ORSAY
n° d'ordre:

THESE

DE DOCTORAT D'ETAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTEE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

M. Patrick JUNCAR

LABORATOIRE AIME COTTON
C.N.R.S.

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

UN INSTRUMENT DE MESURE ABSOLUE OU RELATIVE DE NOMBRES D'ONDES DE LASER CONTINU OU FONCTIONNANT EN IMPULSION : LE SIGMAMETRE.

APPLICATION A L'ETUDE SPECTROSCOPIQUE DES RAIES D DE SERIES D'ISOTOPES RADIOACTIFS D'ALCALINS.

SOUTENUE LE 18 Juin 1982 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM. P. JACQUINOT , Président

P. BOUCHAREINE
P. GIACOMO
R. KLAPISCH
S. LIBERMAN
A. MARECHAL
J. PINARD

ORSAY
n° d'ordre:

THESE

DE DOCTORAT D'ETAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTEE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

M. Patrick JUNCAR

LABORATOIRE AIME COTTON
C.N.R.S.

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

UN INSTRUMENT DE MESURE ABSOLUE OU RELATIVE DE NOMBRES D'ONDES DE LASER CONTINU OU FONCTIONNANT EN IMPULSION : LE SIGMAMETRE.

APPLICATION A L'ETUDE SPECTROSCOPIQUE DES RAIES D DE SERIES D'ISOTOPES RADIOACTIFS D'ALCALINS.

SOUTENUE LE 18 Juin 1982 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM. P. JACQUINOT , Président
P. BOUCHAREINE
P. GIACOMO
R. KLAPISCH
S. LIBERMAN
A. MARECHAL
J. PINARD

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Je remercie très vivement Monsieur le Professeur P. JACQUINOT pour l'accueil bienveillant qu'il m'a réservé au Laboratoire Aimé Cotton et de l'intérêt constant qu'il a manifesté pour ce travail.

J'ai eu la chance d'effectuer ce travail sous la direction de J. PINARD et de pouvoir profiter quotidiennement de son expérience et de son ingéniosité. Je ne saurais lui exprimer quel plaisir j'ai eu à travailler avec lui et je le remercie de m'avoir permis d'apporter une modeste contribution à la réalisation de l'une de ses géniales inventions qu'est le sigmamètre.

S. LIBERMAN n'a jamais cessé de m'encourager et de me conseiller, que ce soit au cours de ce travail ou pour mon activité future ; qu'il veuille trouver ici le témoignage de ma profonde gratitude.

Je suis heureux de pouvoir également remercier P. GIACOMO, mon parrain au C.N.R.S., de son soutien efficace et de l'intérêt qu'il a bien voulu accorder tout particulièrement à certains aspects de mon travail. Je lui suis reconnaissant de l'accueil chaleureux qu'il m'a réservé au B.I.P.M. où une expérience importante a dû être entreprise pour mener à bien ce travail.

Je remercie Monsieur R. KLAPISCH, Directeur Scientifique au C.E.R.N., Monsieur le Professeur A. MARECHAL et Monsieur le Professeur P. BOUCHAREINE de l'intérêt qu'ils ont bien voulu manifester pour mon travail en acceptant de faire partie du jury de soutenance. Je remercie particulièrement P. BOUCHAREINE d'avoir accepté la tâche ingrate d'être mon rapporteur.

Je voudrais remercier tout particulièrement H. T. DUONG et J. L. VIALLE qui m'ont permis, au cours d'une longue collaboration fructueuse et amicale, de m'initier à la spectroscopie atomique.

Les expériences faires au C.E.R.N. sont le fruit d'une collaboration très enrichissante avec une équipe de chercheurs et de techniciens du Laboratoire René Bernas ; je voudrais exprimer à R. KLAPISCH, G. HUBER, C. THIBAULT, F. TOUCHARD, M. de SAINT SIMON, S. BÜTTGENBACH, A. PESNELLE, P. GUIMBAL, J. M. SERRE, J. F. KEPENSKI, M. JACOTIN et R. FERGEAU combien j'ai apprécié ce travail d'équipe qui n'aurait pu aboutir sans une entente amicale constante.

Je remercie beaucoup H. G. BERRY ; c'est sous son impulsion que nous avons pu effectuer une expérience intéressante.

Je voudrais remercier, même s'il m'est impossible de tous les citer, tous ceux qui m'ont permis d'effectuer ce travail dans les conditions les meilleures

Grâce à M. G. SCHWEIGHOFER et R. LEROUX l'utilisation du sigmamètre a été grandement facilitée en le couplant avec un mini-ordinateur. Je leur en suis vivement reconnaissant.

Ce travail n'aurait pas existé sans la participation efficace de tous les techniciens des différents services et je les remercie vivement de cette aide. Je tiens à remercier particulièrement G. CLINARD pour son concours précieux ; c'est grâce à son habileté et à celle de G. COLAS que de nombreux ensembles optiques particulièrement délicats ont pu être réalisés.

Mes remerciements vont également à C. VIALLE, D. GARCES et M. HOFFMAN pour leur contribution à la réalisation des illustrations de ce mémoire ainsi qu'à G. FONTAINE qui a su transcrire, avec une rare clairvoyance, un manuscrit souvent confus. Enfin, je remercie tous les membres du laboratoire, chercheurs et techniciens, de la sympathie et de la confiance qu'ils m'ont accordée.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENERALE 1

Première Partie : UN INSTRUMENT DE MESURE ABSOLUE ET RELATIVE DE NOMBRES D'ONDES ISSUS DE LASERS CONTINUS OU FONCTIONNANT EN IMPULSIONS : LE SIGMAMETRE 9

I - INTRODUCTION 11

1 - POSITION DU PROBLEME 11

2 - NOUVEAUX TYPES D'INSTRUMENTS BASES SUR L'UTILISATION D'INTERFEROMETRES A DEUX ONDES 12

3 - INSTRUMENTS BASES SUR L'UTILISATION D'INTERFEROMETRES A ONDES MULTIPLES 14

II - RAPPEL DU PRINCIPE DE LA METHODE 17

III - DESCRIPTION DES DIFFERENTES PARTIES DE L'APPAREIL 23

1 - L'ENSEMBLE OPTIQUE DU SIGMAMETRE 23

a) Rappel des fonctions 23

b) Choix du verre pour la réalisation de l'ensemble optique 24

c) Achromatisme des différences de marche 27

d) Autre géométrie possible 32

2 - L'ENSEMBLE MECANIQUE 33

3 - OPTIQUE D'ENTREE DU SIGMAMETRE 35

4 - ENSEMBLE DETECTEURS 38

5 - ASSERVISSEMENT DES DIFFERENCES DE MARCHE 39

a) Description de la méthode 39

b) Remarque 41

c) Dynamique du système 42

IV - MESURES 45

1 - INTRODUCTION 45

2 - CORRECTION SUR LA LECTURE DES EXCEDENTS FRACTIONNAIRES 47

3 - CALIBRATION DES DIFFERENCES DE MARCHE 50

a) Rappel du principe de la méthode des excédents fractionnaires 50

b) Sources de références 52

c) Mesures 55

4 - ACHROMATISME DE L'INSTRUMENT (MESURE A BASSE RESOLUTION) 55

5 - MESURE A HAUTE RESOLUTION 57

a) Principe de la mesure 57

b) Exemple de mesure de nombres d'ondes issus de lasers continus 61

6 - MESURES DE NOMBRES D'ONDES DE RADIATIONS DELIVREES PAR DES LASERS FONCTIONNANT EN IMPULSIONS 63

a) Introduction 63

b) Traitement électronique 64

c) Expérience test 65

V - SOURCES D'ERREURS. 67

1 - INTRODUCTION 67

2 - FAISCEAUX GAUSSIENS 69

3 - DESALIGNEMENT DU FAISCEAU LASER 72

4 - DEREGLAGE DE L'INTERFEROMETRE 74

5 - ERREUR SUR LA LECTURE DE LA PHASE $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ 77

6 - CONCLUSION 79

VI - APPLICATIONS 81

A - INTRODUCTION 81

B - ASSERVISSEMENT ET PILOTAGE DE LA FREQUENCE DES LASERS ACCORDABLES ; MESURES RELATIVES DE FREQUENCES 81

1) Position du problème 81

2) Principe 83

a) Obtention d'un signal d'erreur 83

b) Balayage du nombre d'ondes issu des lasers .. 86

3) Précision de la méthode, sources d'erreurs 90

a) Introduction 90

b) Erreur sur la lecture de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ 91

c) Calibration de la différence de marche 91

d) Exemples de mesures relatives 95

e) Erreur due à la dispersion de l'indice de l'air 97

4) Description de l'appareil 101

C - MESURE ABSOLUE DE LA RAIE à $\lambda = 587{,}6$ nm DE L'HELIUM (TRANSITION $2p\ ^3P_J - 3d\ ^3D_J$) 106

1) Position du problème 106

2) Niveaux d'énergie 107

3) Mesure absolue de la transition $2d\ ^3S_1 - 3d\ ^3D_3$.. 108

4) Mesures des transitions $2p\ ^3P_1 - 3d\ ^3D_2$ et $2p\ ^3P_2 - 3d\ ^3D_3$ 108

CONCLUSION 111

VII - ANNEXES 113

Annexe I : Calcul de l'erreur de phase introduite par la réflexion parasite de la face supérieure de l'ensemble optique 115

Annexe II : Description des lasers He-Ne asservis sur une composante hyperfine d'une raie d'absorption saturée de la molécule d'iode 119

Annexe III : Description d'une expérience de mesure précise de deux raies de référence fournies par un laser à colorant monomode dont la fréquence est asservie sur une composante hyperfine d'une raie d'absorption saturée de la molécule d'iode 131

Deuxième Partie : APPLICATION DU SIGMAMETRE A L'ETUDE SPECTROSCOPIQUE DES RAIES D DE SERIES D'ISOTOPES RADIOACTIFS D'ALCALINS 137

I - INTRODUCTION 139

II - RAPPELS GENERAUX DE LA METHODE EXPERIMENTALE 143

A - NIVEAUX D'ENERGIE ET STRUCTURES HYPERFINES 143

1) Niveaux d'énergie des alcalins 143

2) Atomes alcalins dans un champ magnétique : l'effet Zeeman hyperfin 145

3) Sélection des atomes par un champ magnétique inhomogène 145

B - PRINCIPE DE LA METHODE EXPERIMENTALE 148

1) Schéma général de l'expérience 148

2) Production du jet d'atomes radioactifs 150

3) Zone d'excitation optique 150

4) Méthode de détection des transitions optiques .. 151
5) Allure des signaux observés 153
6) Sélection et détection des atomes 155
7) Sensibilité de la méthode 156

C - LE LASER ; CONTROLE ET BALAYAGE DE LA FREQUENCE DU RAYONNEMENT 157
1) Introduction 157
2) Le laser 157
3) Asservissement de la fréquence du laser sur sigmamètre 159

D - CONSTANTES NUCLEAIRES MESUREES 161
1) Le spin I du noyau 162
2) Le moment magnétique μ_I 163
3) Le moment quadrupolaire spectroscopique Q 164
4) La variation du rayon carré moyen de la distribution des charges $\delta\langle r^2\rangle$; effet de volume 165

III - FRANCIUM 167

1 - PRESENTATION DES DIFFICULTES EXPERIMENTALES 167

2 - EXPERIENCE A BASSE RESOLUTION 172
a) Modifications au montage expérimental 172
b) Enregistrement du signal ; calibration 176

3 - EXPERIENCE A HAUTE RESOLUTION 177
a) Mesure de la raie de résonance D_2 177
b) Enregistrement de la structure hyperfine 178
c) Résultats 181
d) Détermination de la raie de résonance D_1 181

IV - DOUBLE RESONANCE 183

1 - INTRODUCTION 183

2 - PRESENTATION DE LA METHODE 188

3 - PRINCIPE DE L'EXPERIENCE 190

4 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL 192

5 - ETALONNAGE DE LA PUISSANCE DU CHAMP RF EN FONCTION DE LA FREQUENCE 194

6 - INTENSITE DU CHAMP RF 199

7 - RESULTATS 201

8 - PRECISION DE LA METHODE 205

CONCLUSION 207

CONCLUSION GENERALE 209

PERSPECTIVES 211

BIBLIOGRAPHIE 213

INTRODUCTION GENERALE

Durant ces dernières années la physique atomique et moléculaire a beaucoup bénéficié de l'apport des lasers, que ceux-ci soient à longueurs d'ondes fixes ou accordables, monomodes ou multimodes, fonctionnant en continu ou en impulsions. L'apparition des lasers à colorant monomodes et à longueur d'onde variable [1], voici dix ans, a contribué pour une très large part à un tel essor et de nombreuses nouvelles méthodes de spectroscopie sub-Doppler ont vu le jour [2][3][4]. Cependant leur développement a nécessité la maîtrise des problèmes de stabilisation et de mesures de fréquences absolues et relatives. En effet les méthodes classiques couramment utilisées jusqu'alors pour mesurer la fréquence de rayonnement monochromatique étaient, en fait, mieux adaptées au rayonnement émis par des sources spectrales classiques (élargies par effet Doppler) et leur précision atteignait rarement 10^{-7}, alors que, pour certaines expériences de spectroscopie atomique sub-Doppler, il est nécessaire de mesurer la fréquence du rayonnement laser avec une beaucoup plus grande précision.

Pour les mesures absolues de fréquence, citons, par exemple, les expériences de J. E. M. GOLDSMITH et al. [5] et de S. R. AMIN et al. [6] qui ont permis la mesure de la constante de Rydberg avec une précision de l'ordre de 10^{-9} à partir de la mesure très précise de la longueur d'onde de la raie d'hydrogène $H\alpha$ D_1 correspondant à la transition $(2s_{1/2} - 3p_{1/2})$. Des mesures analogues effectuées par exemple sur l'hélium ou les séquences isoélectroniques de l'hélium [7] ont permis, par comparaison avec des valeurs obtenues par un calcul purement théorique, de tester les théories atomiques et les corrections dues à l'électrodynamique quantique. D'autre part, l'apparition des premiers lasers continus He-Ne à $\lambda = 3{,}39\ \mu$ dont la fréquence était asservie sur une composante hyperfine d'une raie d'absorption saturée du méthane

[8] mettait en évidence les nouvelles possibilités métrologiques de ce type de source dont la stabilité et la reproductibilité est de plusieurs ordres de grandeur meilleure que celle de l'étalon primaire (défini à partir de la raie orangée à $\lambda = 605,8$ nm du Krypton 86). La mesure simultanée de la fréquence et de la longueur d'onde d'un tel laser asservi, respectivement par rapport à l'étalon de temps (horloge à césium) et l'étalon de longueur, a conduit à la détermination de la vitesse de la lumière $c = 299\ 792\ 458,0(12)$ m/s avec une précision de l'ordre de 4.10^{-9} [9].

Au contraire, dans d'autres expériences de spectroscopie atomique, on recherche simplement à effectuer la mesure d'écarts relatifs entre différentes composantes d'une raie spectrale (ou entre deux raies proches) comme par exemple les mesures de structures fines ou hyperfines de niveaux atomiques. On connaît bien les méthodes de résonance magnétique qui ont permis de mesurer l'écart hyperfin du niveau fondamental $6s\ ^2S_{1/2}$ de l'atome de Césium 133 avec une précision supérieure à 10^{-13}. Pour les états excités, les méthodes de double résonance et de croisement de niveaux ont permis des mesures d'écart Zeeman ou hyperfin à la précision uniquement limitée par la largeur naturelle des niveaux. Ces écarts relatifs des niveaux d'énergie mesurés appartiennent en fait à un même type d'atomes et il n'est pas possible, avec de telles méthodes, de mesurer une différence de niveaux d'énergie entre des atomes d'espèces différentes comme par exemple la mesure du déplacement isotopique de séries d'isotopes d'un même élément. Là encore, les lasers apportent de nouvelles possibilités et les méthodes les plus précises pour effectuer des mesures d'écarts relatifs de fréquence utilisent deux lasers dont on mesure la fréquence de battement [10] ou un seul dont l'amplitude est modulée à haute fréquence ; on utilise alors une bande latérale comme seconde source [11]. Cependant ces méthodes sont limitées par la bande passante des détecteurs ou des modulateurs et les intervalles spectraux mesurables dépassent difficilement quelques GHz. La mesure d'écarts plus grands (30 GHz par exemple) peut nécessiter un certain nombre de lasers de référence intermédiaires ou d'oscillateurs

stables, ce qui, de ce fait, conduit à des méthodes expérimentales très complexes difficilement applicables.

Plusieurs nouvelles méthodes de mesure, mieux adaptées au rayonnement émis par les lasers, ont donc été développées dans différents laboratoires. Pour notre part, nous avons conçu un instrument original de mesure de nombres d'ondes fournis par des lasers. L'instrument que j'ai décrit dans une thèse de 3ème cycle [12], appelé SIGMAMETRE, est particulièrement bien adapté à l'asservissement, au pilotage et aux mesures relatives de nombres d'ondes. Bien que j'aie également montré comment la méthode permettait, en principe, d'effectuer des mesures absolues de nombres d'ondes, il n'était pas possible, avec les premiers appareils construits, de l'appliquer expérimentalement. La première partie de ce mémoire sera précisément consacrée à l'étude, la réalisation et les performances d'un nouveau sigmamètre plus particulièrement destiné aux mesures absolues de nombres d'ondes issus de lasers accordables monomodes continus ou de lasers fonctionnant en impulsions. Nous décrivons également un second appareil, plus simple, destiné à l'asservissement et au pilotage très précis de la fréquence des lasers accordables. Cet appareil a été utilisé dans de très nombreuses expériences de spectroscopie atomique à très haute résolution que nous avons effectuées, d'abord à Orsay, puis au C.E.R.N., sur de longues séries d'isotopes radioactifs.

Le but des expériences de spectroscopie atomique entreprises sur les isotopes radioactifs était de déterminer certaines caractéristiques nucléaires des noyaux comme le spin, le moment magnétique, le moment quadrupolaire électrique ainsi que la variation du rayon carré moyen de la distribution des charges à l'intérieur du noyau tout au long de la chaîne isotopique d'un même élément. L'importance de l'apport de la physique atomique aux connaissances des propriétés nucléaires par l'étude des structures hyperfines et du déplacement isotopique des transitions atomiques est bien connue. Ainsi, pendant plusieurs décades précédant les années 1970, d'importants travaux expérimentaux et théoriques

ont été consacrés à des centaines d'isotopes. Ces efforts considérables ne concernaient cependant qu'environ 10% de l'ensemble des noyaux liés. Pour aller plus loin on se heurtait à la fois à la durée de vie de plus en plus brève des noyaux et à leur production en quantité de plus en plus faible. Cependant, si l'on peut s'éloigner suffisamment de la vallée de stabilité, on doit trouver des zones de déformations des noyaux prédites par la théorie [13]. Dans les années 70, les accélérateurs ont permis, par bombardement d'une cible appropriée, d'obtenir un éventail extrêmement large d'isotopes de durée de vie très brève (quelques millisecondes) et, grâce à la mise en place de séparateurs de masse en ligne, ces éléments très rares ont pu être étudiés. On peut signaler que la quantité des éléments produits par cette méthode reste extrêmement faible à cause de la valeur très petite des sections efficaces de production (quelques μ barn pour le Sodium 31). Il était donc nécessaire de trouver des méthodes expérimentales très sensibles afin de pouvoir étudier ces noyaux très instables. Citons par exemple les premières expériences de E. W. OTTEN et al. [14] réalisées sur les isotopes 181-205 du mercure et pour lesquelles de nombreux paramètres nucléaires ont été déduits des mesures de structure hyperfine et de déplacement isotopique dans la raie spectrale $(6s^2\ {}^1S_0 - 6s6p\ {}^3P_1)$ à $\lambda = 2537$ Å .

Grâce à l'introduction, en spectroscopie, du laser monomode accordable en 1972, de nombreuses méthodes plus sensibles ont vu le jour. La plupart d'entre elles sont basées sur l'observation de la fluorescence. La méthode que nous avons choisie porte sur la détection des atomes eux-mêmes ayant interagi avec le rayonnement laser. Elle a l'avantage de posséder un rendement propre théorique voisin de l'unité. Cependant elle ne peut être applicable qu'aux atomes pour lesquels l'interaction résonnante avec un rayonnement électromagnétique apporte une modification notable détectable et stationnaire de leur état électronique. Les atomes alcalins présentent cette propriété. Nous verrons comment elle peut être mise à profit pour réaliser une méthode de détection ultrasensible. Les expériences que nous avons réalisées en collaboration

avec une équipe du Laboratoire René Bernas ont, en fait, nécessité des compétences scientifiques dans des domaines très variés et ont fait l'objet de plusieurs thèses de Doctorat [15][16][17][18]. Mon travail personnel, effectué dans le cadre de ces expériences, concerne principalement la partie laser et les mesures de fréquences qui s'y rapportent. L'exposé sera donc essentiellement abordé sous l'angle particulier des problèmes rencontrés lors de ces différentes mesures. Ainsi, après avoir rappelé le principe de la méthode, nous décrivons, dans la deuxième partie de ce mémoire, deux expériences particulières qui nous semblent illustrer les possibilités de la méthode de mesure utilisée : l'une réalisée sur une série d'isotopes de francium et l'autre sur une série d'isotopes de sodium. Les résultats obtenus seront présentés sans interprétation nucléaire.

Première Partie

UN INSTRUMENT DE MESURE ABSOLUE ET RELATIVE DE NOMBRES D'ONDES ISSUS DE LASERS CONTINUS OU FONCTIONNANT EN IMPULSIONS : LE SIGMAMETRE

I - INTRODUCTION.

1 - POSITION DU PROBIEME.

L'apparition, dans les années 1970, des lasers accordables (continus ou fonctionnant en impulsions) a suscité le développement de nouveaux appareils de mesure de longueurs d'ondes plus particulièrement adaptés à ce type de source. En effet, à cette époque, les méthodes de mesure les plus couramment utilisées étaient destinées à la mesure de sources classiques qui ne possèdent pas les propriétés spécifiques du rayonnement issu des lasers comme la brillance, la directivité ou la cohérence temporelle ; aussi les appareils de mesure utilisés pour ce type de source (spectromètre à réseaux, interféromètre de Michelson, interféromètre de Fabry-Perot) sont en général assez volumineux, utilisent, comme détecteur, des photomultiplicateurs très performants et leur précision atteint rarement 10^8. On ne trouve des appareils plus perfectionnés que dans les laboratoires de métrologie comme, par exemple, l'interféromètre de Michelson du B.I.P.M. (Sèvres) ou celui du B.N.M. (Paris) dont la précision peut atteindre 10^{10}.

C'est donc depuis l'utilisation des lasers, et plus particulièrement des lasers à longueurs d'onde variable, que de nouveaux instruments de mesures ont vu le jour dans divers laboratoires afin de satisfaire les besoins des spectroscopistes. Rappelons quelles sont les qualités que devrait posséder un appareil idéal :

- possibilité de centrer facilement la fréquence du rayonnement laser sur celle d'une transition atomique hyperfine,

- mesurer la fréquence de ce rayonnement à une précision relative au moins de l'ordre de 10^{-8} ,

- éventuellement possibilité de piloter cette fréquence afin de pouvoir effectuer des balayages linéaires,

ces appareils doivent, en plus, être assez compacts pour pouvoir être utilisés, en ligne, lors d'une expérience de spectroscopie proprement dite, et donc être d'un maniement relativement simple et fiable.

Parmi ces nouveaux instruments de mesure, ceux qui ont été le plus souvent étudiés peuvent être groupés en deux catégories suivant que leur principe repose sur l'utilisation d'un interféromètre à deux ondes ou d'un interféromètre à ondes multiples.

2 - NOUVEAUX TYPES D'INSTRUMENTS BASES SUR L'UTILISATION D'INTERFEROMETRES à DEUX ONDES.

Dans la première catégorie, l'ensemble de base est généralement constitué d'un interféromètre de Michelson à miroir mobile ; elle utilise une version améliorée de la méthode du comptage de franges qui consiste à mesurer non seulement la partie entière k de l'ordre d'interférence (nombre de franges entières), mais également l'excédent fractionnaire ε $(\sigma\delta = k + \varepsilon)$, permettant ainsi d'augmenter la précision atteinte par l'instrument de mesure [19][20]. A titre d'exemple, on peut citer le "lambdamètre" de Hall et al., dont le schéma de principe est décrit par la Fig. (1). Les miroirs de l'interféromètre sont constitués de deux trièdres solidaires montés sur un chariot mobile qui se déplace sur une longueur L . On envoie simultanément la longueur d'onde de référence λ_r et la longueur d'onde inconnue λ_i ; les deux systèmes de franges fournissent deux signaux sinusoïdaux du type $I_0(1 + \cos 2\pi\delta/\lambda)$ qui, après un traitement électronique approprié,

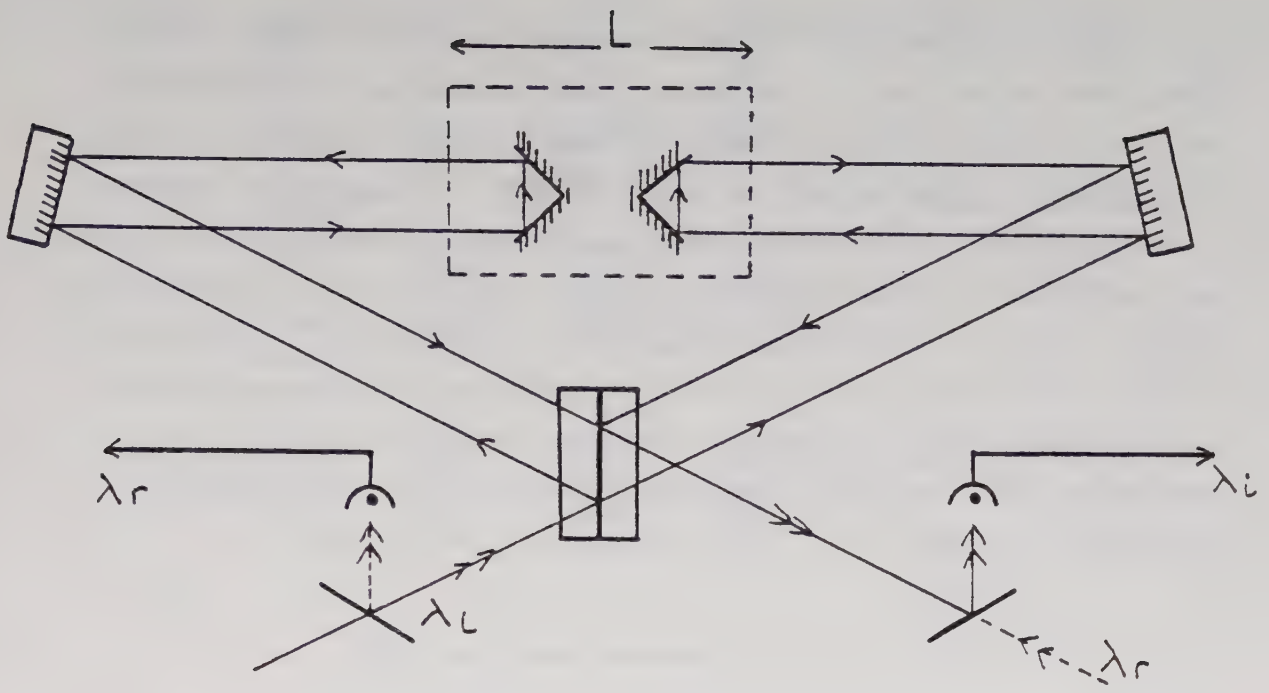


Figure 1

sont envoyés dans deux systèmes de comptage ; on a (dans le cas d'un appareil fonctionnant sous vide) :

$$\lambda_i = \frac{\lambda_r N_r}{N_i} \quad \text{où} \quad N_r = \frac{F \times 4L}{\lambda_r} \quad \text{et} \quad N_i = \frac{F \times 4L}{\lambda_i}$$

représentent le nombre de franges respectivement compté pour chacun des faisceaux détectés à la sortie de l'interféromètre et où le coefficient multiplicateur F utilisé lors du traitement électronique est de l'ordre de 100, ce qui permet d'augmenter la précision des mesures d'un même facteur. Cette méthode constitue ainsi une solution relativement simple et astucieuse équivalente à la méthode analogue mais plus délicate qui consiste à compter le nombre de franges entières, puis à déterminer la partie fractionnaire supplémentaire à la précision de 1/100ème de frange [21]. La résolution théorique de l'appareil R est égale à $\frac{4FL}{\lambda_i - \lambda_r}$, soit pour F = 100 et L = 1 m : $R \simeq 3.10^8$, ce qui donne une précision relative sur la mesure des longueurs d'onde de l'ordre de 3.10^{-9} [20]. Sous vide, cet appareil est parfaitement achromatique puisque les franges comptées sont proportionnelles à une différence de

différence de marche correspondant au trajet du miroir mobile. Toutefois, dans la pratique, le système est apériodique car le déplacement de la pièce mobile ne peut être parfaitement linéaire ; cette non-linéarité doit être compensée par un asservissement (à l'aide de la longueur d'onde de référence qui suit le même trajet dans l'interféromètre) qui agit soit sur le déplacement, soit, comme c'est le cas pour l'appareil de Hall, sur le coefficient multiplicateur F . De plus, l'utilisation de cette méthode se limite aux lasers continus puisque la mesure s'effectue pendant toute la durée de déplacement du miroir mobile ; cette méthode ne permet pas, non plus, l'asservissement et le pilotage de la fréquence d'un laser.

3 - INSTRUMENTS BASES SUR L'UTILISATION D'INTERFEROMETRES à ONDES MULTIPLES.

La deuxième catégorie d'instruments récemment développés utilise plusieurs interféromètres de Fabry-Perot dont les épaisseurs suivent approximativement une progression géométrique (Fig. 2), méthode déjà employée par les inventeurs de ce type d'interféromètre, mais ici l'analyse des anneaux d'interférence est effectuée par une (ou plusieurs) barrette de photodiodes dont le signal vidéo est traité électroniquement par un mini-ordinateur. La précision relative atteinte par ce type d'instrument est un peu inférieure à celle obtenue par l'appareil précédent (au mieux de l'ordre de 10^{-7}) mais le système, ne comportant aucune pièce mobile, est également adapté à la mesure de nombres d'ondes issus de lasers fonctionnant en impulsions. Il semble, toutefois, qu'il soit difficile de réaliser un instrument rigoureusement achromatique dans un grand domaine spectral puisque ce type d'interféromètre ne peut avoir une bonne finesse, et donc conduire à des mesures précises, que dans le cas d'utilisation de couches multidiélectriques nécessairement non-

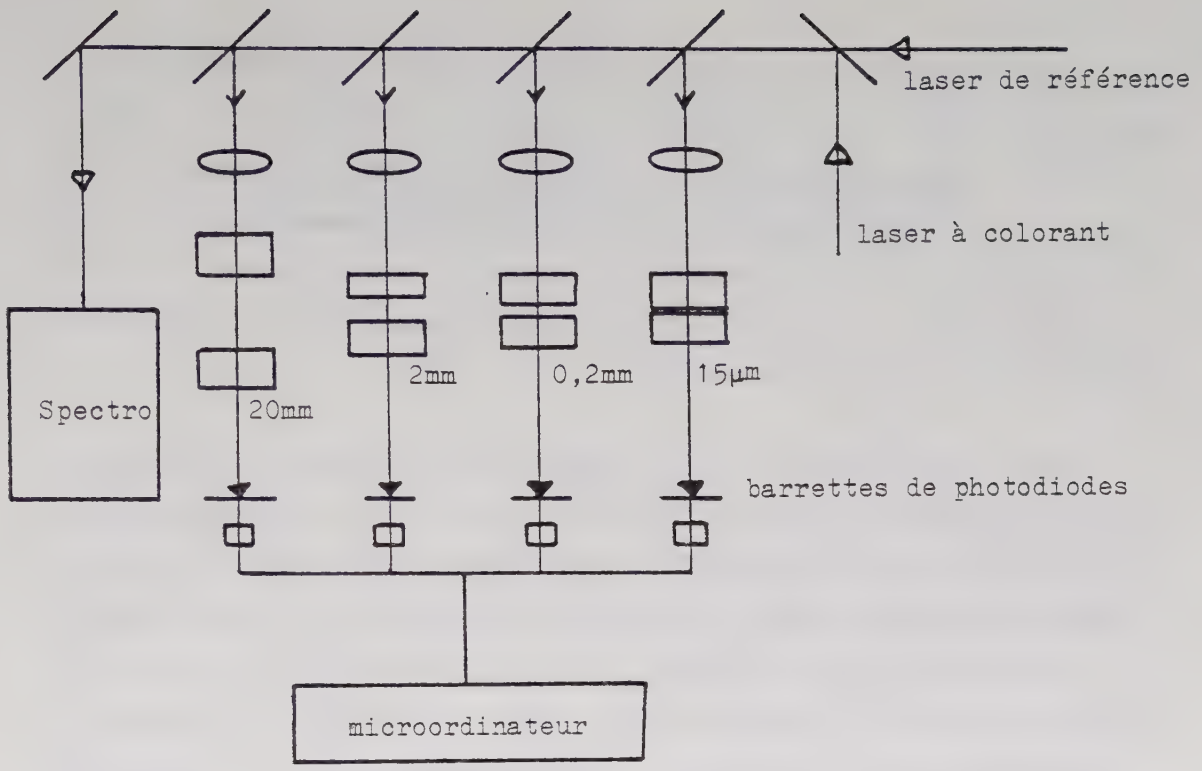


Figure 2

achromatiques. Citons, comme exemple, l'appareil récemment développé par Konishi et al. [22] dont la précision relative est de l'ordre de $\pm 1.10^{-7}$ et qui fonctionne dans un intervalle spectral compris entre 450 et 650 nm. Grâce à l'utilisation du mini-ordinateur, cet appareil peut également être utilisé pour piloter la fréquence des lasers. Signalons encore le développement récent d'un autre système basé sur l'utilisation d'un interféromètre à franges de Fizeau [23].

L'appareil que nous avons développé au laboratoire, dont le principe a déjà été décrit dans ma thèse de 3ème cycle [12], avant même l'apparition des deux autres appareils décrits brièvement ci-dessus, forme en quelque sorte une synthèse de ces deux systèmes : en effet, ainsi que nous le rappellerons au deuxième chapitre, son principe repose comme pour le lambdamètre, sur l'utilisation d'interféromètres de Michelson dont l'achromaticité peut être obtenue sur un très grand domaine spectral (par exemple tout le visible) ; mais celui-ci ne comporte

aucune pièce mobile, tout comme l'appareil de la seconde catégorie que nous avons décrit, ce qui permet non seulement d'effectuer des mesures de nombres d'ondes de rayonnement laser continu, mais également de ceux issus de lasers fonctionnant en impulsions. Nous verrons que l'information donnée par l'appareil est quasi instantanée et linéaire, en fonction du nombre d'ondes σ, d'où la possibilité d'asservir et de piloter la fréquence des lasers accordables.

Après en avoir rappelé le principe, nous décrivons, dans un troisième chapitre, l'appareil que nous avons construit au laboratoire ; le chapitre suivant sera consacré aux mesures proprement dites ; nous décrivons ensuite les différentes sources d'erreurs limitant les performances de notre appareil (Chapitre V). Dans le Chapitre VI, nous décrivons diverses applications du sigmamètre et plus particulièrement celles concernant le pilotage et l'asservissement des lasers accordables. Le principe de la méthode étant basé sur l'utilisation de plusieurs interféromètres de Michelson dont les différences de marche doivent être parfaitement calibrées à l'aide de longueurs d'onde de référence, on trouvera, en Annexe, une brève description des lasers que nous avons construits et d'un montage expérimental destiné à fournir les longueurs d'ondes de référence précises nécessaires à cette calibration.

II - RAPPEL DU PRINCIPE DE LA METHODE.

L'élément de base de notre appareil est un interféromètre de Michelson à double voie dont le schéma de principe est décrit par la Fig. (3). Les différents éléments qui composent l'ensemble optique, pièce maîtresse de l'interféromètre dans une version compacte et achromatique, sont assemblés sous contrôle interférométrique suivant une méthode qui sera décrite plus loin (Chap. III-1-c) . Grâce à la présence d'un dioptre verre-air dans l'un des bras de l'interféromètre, le faisceau qui le traverse subit une réflexion totale qui a la propriété de déphaser, l'une par rapport à l'autre, les deux composantes du faisceau respectivement parallèle et perpendiculaire au plan d'incidence. Afin que l'intensité de ces deux composantes soit approximativement identique, la polarisation du faisceau à l'entrée de l'interféromètre est orientée à 45° par rapport au plan d'incidence. L'angle d'incidence et l'indice moyen du verre sont choisis de telle sorte que ce déphasage soit égal à $\frac{\pi}{2}$; nous verrons au Chapitre III-1-b que la dispersion de l'indice du verre utilisé étant faible, ce déphasage est quasiment constant dans de très grands domaines spectraux comme le visible. En analysant donc séparément l'état d'interférence de chaque polarisation du faisceau à la sortie de l'interféromètre par deux détecteurs photosensibles (voir Fig. 3) ; on obtient deux signaux respectivement proportionnels à :

$$I_0(1 + \cos(2\pi\sigma\delta + \Psi_0))$$

et $$I_0(1 + \sin(2\pi\sigma\delta + \Psi_0)) \qquad (1)$$

où - σ est le nombre d'ondes de la radiation qui traverse l'interféromètre,

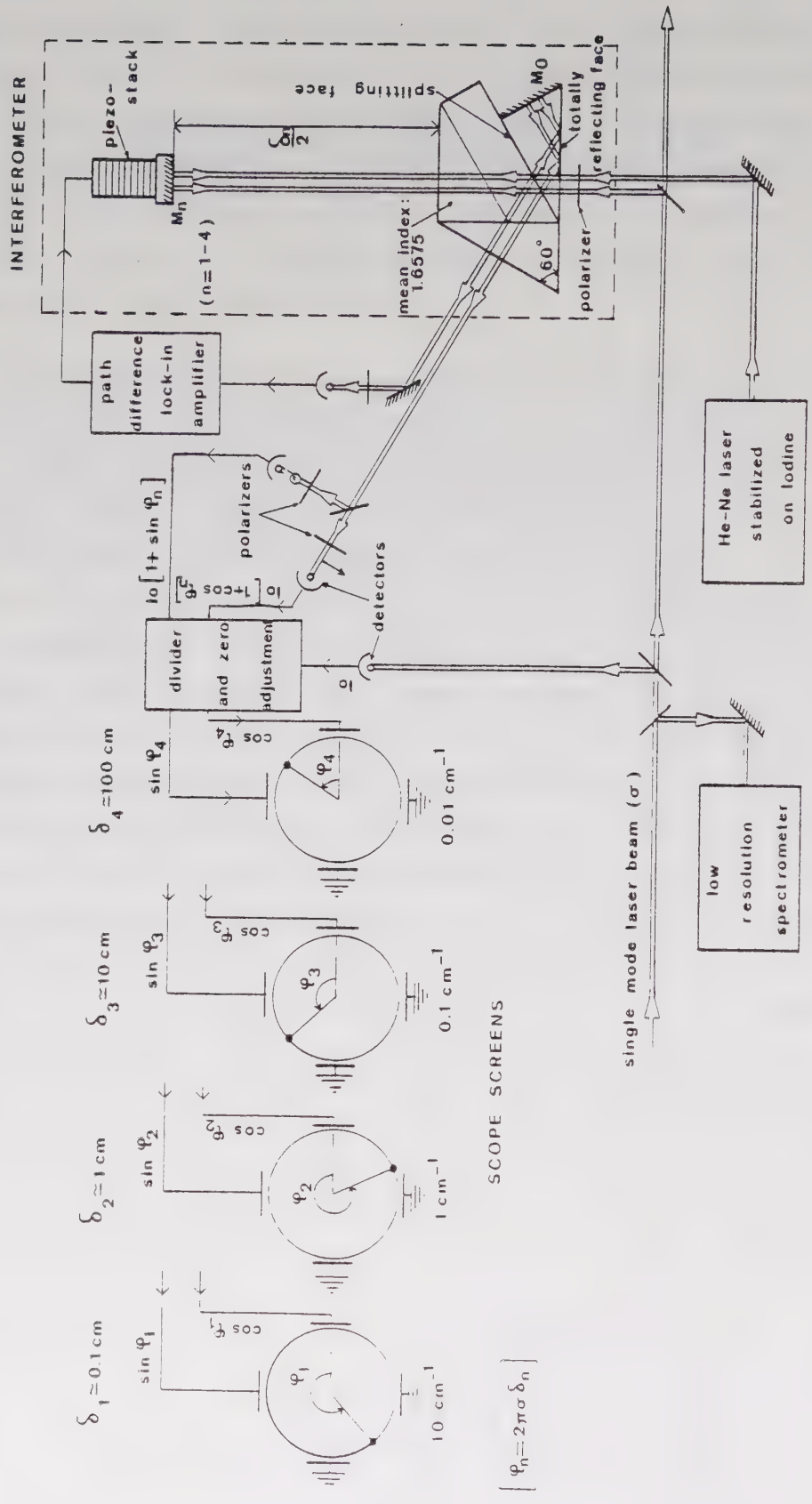


Figure 3 : Schéma de principe du sigmamètre.

- δ la différence de marche,
- Ψ_0 une différence de phase constante due à la réflexion totale et déterminée par les relations de Fresnel (Chap.III-1-b) ,

et - I_0 l'intensité du rayonnement.

Notons que, contrairement à d'autres méthodes de déphasage utilisées dans les premiers sigmamètres que nous avons décrits auparavant [12], celle-ci a non seulement l'avantage d'être quasiment achromatique dans de très grands domaines spectraux, mais, de plus, elle est relativement insensible à tout type de déréglage de l'interféromètre car il n'affecte pas la valeur du déphasage à la réflexion totale.
Les deux signaux (1) se réduisent à :

$$\cos\ (2\pi\sigma\delta + \Psi_0)$$
$$\text{et} \qquad \sin\ (2\pi\sigma\delta + \Psi_0) \qquad (2)$$

par un traitement électronique simple qui consiste à diviser les signaux (1) par un signal proportionnel à l'intensité I_0 du faisceau lumineux entrant puis à soustraire la composante continue.

De (2) on peut extraire l'argument $\varphi = (2\pi\sigma\delta + \Psi_0)$ qui est une fonction linéaire de σ soit par un procédé purement électronique ou, de manière plus simple, en envoyant les deux signaux $\cos\varphi$ et $\sin\varphi$ respectivement sur les plaques verticale et horizontale d'un oscilloscope. On obtient en effet un point dont la position angulaire $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ donne la valeur de σ (si δ est connu et fixe) avec une indétermination $\frac{k}{\delta}$. Chaque tour complet correspond à une variation de σ égale à $\frac{1}{\delta}$. Afin de lever l'indétermination $\frac{k}{\delta}$, on utilise une juxtaposition de quatre interféromètres de même type, mais dont les différences de marche suivent approximativement une progression géométrique :

$$\delta_1 \sim 0{,}1 \text{ cm}$$
$$\delta_2 \sim 1 \text{ cm}$$
$$\delta_3 \sim 10 \text{ cm}$$
$$\delta_4 \sim 100 \text{ cm} .$$

L'indétermination k/δ est alors donnée par l'interféromètre de plus

petite différence de marche soit $k \times 10$ cm^{-1} qui peut facilement être levée à l'aide d'un spectromètre de très faible pouvoir de résolution. Le nombre exact de cm^{-1} sera donc déterminé par la mesure de la phase φ donnée par le premier interféromètre, le nombre de dixièmes de cm^{-1} par l'interféromètre suivant, et ainsi de suite jusqu'à l'interféromètre de plus grande différence de marche qui donnera le maximum de précision. Si l'on considère que l'on peut facilement apprécier un centième de tour sur la lecture des phases φ, la précision que l'on peut atteindre est alors de l'ordre de $\frac{1}{100\delta_4}$, soit 10^{-4} cm^{-1} (≈ 3 MHz), ce qui correspond à une précision $\frac{d\sigma}{\sigma} = 6 . 10^{-9}$ à 600 nm .

Dans la pratique il est difficile de réaliser des différences de marche suivant une progression géométrique rigoureuse et pour toute mesure de nombre d'ondes il sera nécessaire de calibrer préalablement et avec précision chacune d'elles. Puisque la précision sur la lecture de chaque phase est estimée à environ 1/100 de tour, une précision comparable nécessite que la différence de marche de chaque interféromètre soit stabilisée à mieux que $\frac{\lambda}{100}$. On doit donc avoir :

$$\frac{\Delta\delta}{\delta} < \frac{\lambda}{100\delta} \qquad (3)$$

soit pour $\delta_4 = 100$ cm et $\lambda = 600$ nm : $\Delta\delta = 60$ Å et $\frac{\Delta\delta}{\delta} = 6.10^{-9}$ qui correspond en fait exactement à la précision atteinte par l'appareil de mesure.

De telles stabilités ne peuvent être obtenues de manière simple avec des montages mécaniques passifs. Nous avons donc préféré utiliser un controle dynamique de chaque différence de marche. En effet, celles-ci sont asservies à l'aide d'un laser He-Ne , lui-même asservi sur une raie d'absorption saturée de la molécule d'iode comme il sera décrit au paragraphe 5 du Chapitre III. On sait que la stabilité de tel laser asservi est couramment de l'ordre de 10^{-11} . Ce laser He-Ne sert également de première source de longueur d'onde de référence utilisée à la calibration des différences de marche ; d'autres sources de références analogues sont nécessaires et permettent, à l'aide de la méthode

des excédents fractionnaires, de calibrer chaque différence de marche à la précision désirée comme nous le verrons au paragraphe 3 du Chapitre IV.

Après avoir calibré chaque différence de marche, il est très facile de déduire la valeur du nombre d'ondes d'une radiation monochromatique quelconque à partir des mesures des différentes phases données simultanément par le sigmamètre.

III - DESCRIPTION DES DIFFERENTES PARTIES DE L'APPAREIL.

Nous commencerons ce paragraphe par une discussion détaillée du principe, de la construction et des propriétés de l'ensemble optique du sigmamètre ; puis nous décrirons l'appareil tout entier.

1 - L'ENSEMBLE OPTIQUE DU SIGMAMETRE.

a) Rappel des fonctions.

Comme nous l'avons signalé précédemment, la pièce maîtresse du sigmamètre est composée d'un ensemble optique (Fig. 3). Notre objectif était de réaliser un ensemble compact afin d'augmenter la stabilité des différents interféromètres qui composent le sigmamètre. Aussi, contrairement aux prototypes décrits dans ma thèse de troisième cycle, la plupart des fonctions de ce type particulier d'interféromètre sont rassemblées dans cet ensemble. En effet :

- une face interne, sur laquelle on a déposé une couche métallique semi-réfléchissante, joue le rôle de séparatrice ;

- une autre face est utilisée comme dioptre totalement réfléchissant ;

- et une troisième possède une couche métallique totalement réfléchissante, formant ainsi le miroir commun M_0 du premier bras de chaque interféromètre.

Comme nous le verrons un peu plus loin, tous les éléments optiques sont fixés entre eux par adhérence optique et forment ainsi un ensemble compact. Les seules pièces optiques réglables du sigmamètre sont donc les miroirs M_{1-4} du deuxième bras de chaque interféromètre. Cet ensemble optique doit être parfaitement compensé dans un grand domaine spectral comme, par exemple, le visible et donc posséder certaines quelités :

- Toutes les faces optiques sont polies à mieux que $\lambda/20$.

- Dans cette version, l'ensemble est composé de trois prismes identiques et d'une lame à faces parallèles ; la précision que nous désirons atteindre avec le sigmamètre étant de l'ordre de 10^{-8}, les différents angles respectifs des prismes doivent, dans cette géométrie, être identiques à environ 5.10^{-5} rad près. Une telle précision ne peut être obtenue dans la pratique qu'en utilisant, lors du polissage des faces, des cales d'angles de référence qui peuvent être fabriquées avec une excellente précision ($< 5.10^{-6}$ rad) dans le cas d'angles particuliers (30°, 45°, 60°, 90°).

b) Choix du verre pour la réalisation de l'ensemble optique.

Pour effectuer ce choix, nous devons tenir compte, d'une part de ce qui précède (critères géométriques) et, d'autre part, des relations de Fresnel définissant le déphasage Ψ à la réflexion totale sur le dioptre verre-air ainsi que l'origine de phase Ψ_0 :

Soit $\Psi_{\parallel}$ et $\Psi_{\perp}$ les déphasages respectifs à la réflexion totale de chaque fraction polarisée parallèlement et perpendiculairement au plan d'incidence. On a

$$tg(\Psi_{\parallel}/2) = \frac{n\sqrt{n^2\sin^2 i - 1}}{\cos i} \quad \text{et} \quad tg(\Psi_{\perp}/2) = \frac{\sqrt{n^2\sin^2 i - 1}}{n\cos i} \qquad (4)$$

où n est l'indice de réfraction du milieu et i l'angle d'incidence à la réflexion totale ; à la sortie de l'interféromètre (après un aller-retour) la différence de phase est $\Psi = 2(\Psi_{\parallel} - \Psi_{\perp})$.

De (4) on déduit la relation de Fresnel :

$$tg\left(\frac{\Psi}{4}\right) = tg\left(\frac{\Psi_{\parallel} - \Psi_{\perp}}{2}\right) = \frac{\cos i \sqrt{\sin^2 i - 1/n^2}}{\sin^2 i} \qquad (5)$$

Des trois paramètres Ψ , i et n seul $\Psi = \frac{\pi}{2}$ est imposé car cette valeur permet d'obtenir deux signaux en quadrature de phase à la sortie de l'interféromètre.

Parmi les combinaisons possibles et i et n satisfaisant la relation (5), nous avons choisi celle pour laquelle le déphasage, à la réflexion totale, est achromatique dans le plus grand domaine spectral. Dans le Tableau 1 sont rassemblées les valeurs du déphasage Ψ pour différentes longueurs d'ondes couvrant le visible et pour quelques types de verre Sovirel.

Pour un verre courant (1er exemple du Tableau 1) l'angle d'incidence permettant d'obtenir un déphasage $\Psi = \frac{\pi}{2}$ est donné par la relation (6) obtenue à partir de (5)

$$i = \text{Arc sin} \left[\frac{\left(1 + \frac{1}{n^2}\right)(\pm) \sqrt{\left(1 + \frac{1}{n^2}\right)^2 - 4\left(\frac{1 + tg^2(\Psi/4)}{n^2}\right)}}{2\left[1 + tg^2\left(\frac{\Psi}{4}\right)\right]} \right] \qquad (6)$$

Il y a deux valeurs possibles mais pour la valeur correspondante ou signe "-" le déphasage ainsi que l'origine des phases sont moins achromatiques ; en effet en dérivant par exemple (5) par rapport à n , nous obtenons :

$$\frac{d}{dn}\left[tg\left(\frac{\Psi}{4}\right)\right] = \frac{\cos i}{n^2 \sin^2 i \sqrt{n^2 \sin^2 i - 1}} \qquad (7)$$

Cette relation montre que la variation de $tg\left(\frac{\Psi}{4}\right)$ (donc de Ψ) est d'autant moins rapide que l'indice (variation en $\frac{1}{n^3}$) et l'angle d'incidence à la réflexion totale sont élevés comme l'illustre clairement les exemples du Tableau 1.

TABLEAU 1

Verre		λ = 365 nm	λ = 587,6 nm	λ = 1014 nm
	indice n =	1,536225	1,516800	1,507331
BSC.B 16-64	origine $\Psi_0 = 2\Psi_{\parallel}$	205,35°	197,39°	193,21°
angle d'incidence : (-)	$2\Psi_{\perp}$	117,63°	107,39°	105,16°
i_1 = 47,868°	déphasage Ψ	93,72°	90°	88,05°
	origine $\Psi_0 = 2\Psi_{\parallel}$	256,95°	252,60°	250,37°
angle d'incidence : (+)	$2\Psi_{\perp}$	165,13°	162,60°	161,30°
i_2 = 55,218°	déphasage Ψ	91,82°	90°	89,07°
	indice n =	1,573603	1,547750	1,536420
FBL.B 48-53	origine $\Psi_0 = 2\Psi_{\parallel}$	189,44°	176,91°	170,78°
angle d'incidence :	$2\Psi_{\perp}$	94,72°	88,46°	85,39°
i = 45°	déphasage Ψ	94,72°	88,46°	85,39°
	indice n =	1,685914	1,6575	1,644716
BCS.C 57-57	origine $\Psi_0 = 2\Psi_{\parallel}$	297,69°	294,69°	293,27°
angle d'incidence :	$2\Psi_{\perp}$	206,43°	204,69°	203,87°
i = 60°	déphasage Ψ	91,26°	90°	89,40°

Variations du déphasage Ψ et de l'origine des phases Ψ_0 en fonction de l'indice de réfraction de différents types de verre, à différentes longueurs d'ondes.

Compte tenu de ce qui précède et de la dernière remarque du §.a), notre choix s'est donc porté sur le verre Sovirel type BCS.C 57 57 :

- L'angle d'incidence à la réflexion totale est donc de 60°.

- Les variations du déphasage Ψ sont inférieures à 1,3° dans un domaine spectral qui couvre largement tout le visible.

- L'origine des phases Ψ_0 définie au Chapitre II est déterminée par $\Psi_{\parallel}$ et $\Psi_{\perp}$. Sa localisation sur l'écran d'affichage ainsi que le sens de rotation de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ en fonction de σ dépendent d'une part de la façon dont les signaux, détectés séparément à la sortie de l'interféromètre suivant une polarisation bien déterminée, sont appliqués aux entrées X et Y de l'oscilloscope et, d'autre part, du nombre d'étages amplificateurs utilisés derrière les détecteurs avant l'affichage final de ces signaux : si le sens de rotation correspond au sens trigonométrique (φ croît avec σ) et que le signal correspond à $\Psi_{\parallel}$ est affiché en X, l'origine des phases Ψ_0 est alors égale à $2\Psi_{\parallel}$.

Comme le montre le Tableau 1, la variation de l'origine des phases est, elle-même, inférieure à 3° dans le même intervalle spectral.

Les erreurs systématiques sur la mesure de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta + \Psi_0$ introduites par ces variations (tant sur Ψ que sur Ψ_0) sont donc inférieures à 1/100ème de tour (ou 3,6°). Leurs amplitudes étant bien connues, elles peuvent éventuellement être corrigées, mais la plupart du temps ces corrections ne sont pas nécessaires ; on peut considérer qu'à la fois le déphasage Ψ et l'origine des phases Ψ_0 sont quasiment achromatiques dans un domaine spectral couvrant la région 360 nm à 1500 nm.

c) Achromatisme des différences de marche.

La condition exposée ci-dessus n'est pas suffisante pour réaliser un appareil achromatique ; il en existe une autre qui concerne l'achromatisme de la différence de marche, c'est-à-dire la compensation des

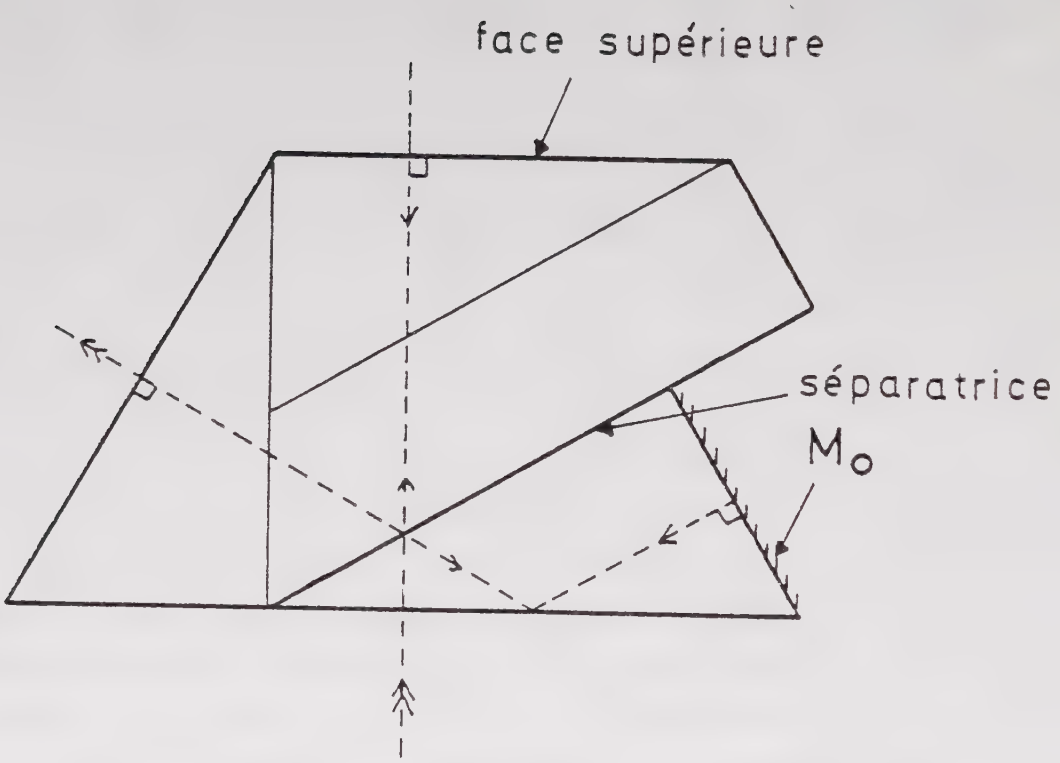


Figure 1

Ensemble optique du sigmamètre.

des épaisseurs de verre dans chacun des bras de l'interféromètre (opération très délicate à réaliser avec ce type d'ensemble optique compact). En effet, si la différence de marche δ doit être constante avec une précision relative meilleure que $\lambda/100$ dans tout le visible (mesure au centième de tour), l'ajustement de cette compensation doit être faite de telle sorte que la différence Δe des épaisseurs de verre entre les deux bras soit inférieure à $\lambda/200\ \Delta n$ où Δn représente la moitié de la dispersion de l'indice de refraction du verre dans l'intervalle spectral considéré. Dans notre cas nous avons :

$$\Delta n \simeq 0{,}02 \quad \text{soit} \quad \Delta e_{max} \simeq 0{,}15\ \mu$$

qui correspond à une variation de la différence de marche

$$\Delta\delta = \pm 2n \cdot \Delta e \simeq \pm 0{,}5\ \mu \ .$$

Les épaisseurs de verre dans les deux bras de l'interféromètre ont été compensées à cette précision suivant une méthode que nous allons décrire. Tout d'abord on peut remarquer (Fig. (4)) que l'ensemble optique lui-même constitue un interféromètre de Michelson, la face supérieure de cet ensemble jouant le rôle de miroir. Pour obtenir la compensation désirée, l'image de cette face supérieure à travers la séparatrice doit donc coïncider à $\pm\Delta e$ près avec le miroir M_0 du premier bras. L'assemblage est réalisé en deux étapes :

- Les trois éléments qui composent la partie supérieure de l'ensemble optique, soit 2 prismes et une lame à faces parallèles, sont fixés entre eux par adhérence optique sous ajustement précis.

- Le dernier prisme (partie inférieure de l'ensemble optique), dont une face possède une couche métallique semi-réfléchissante protégée, doit ensuite être fixée, avec précision, sur la face inférieure de la première partie de l'ensemble de telle sorte que la condition exposée ci-dessus soit satisfaite. Pour réaliser cet assemblage dans de bonnes conditions, les deux parties de l'ensemble optique sont fixées indépendamment sur une monture mécanique spécialement conçue à cet effet et qui possède tous les degrés de liberté nécessaires permettant un ajustement précis de l'orientation et de la position relative des deux parties de l'ensemble

optique (Fig. 5). Après avoir ajusté le parallélisme des deux faces à mettre en contact, cette monture permet d'approcher les deux parties de l'ensemble en maintenant la différence de marche au voisinage de zéro ; ceci en observant les teintes de Newton caractéristiques produites par une source de lumière blanche. Toutefois, afin d'accentuer le contraste des teintes observées, un traitement métallique totalement réfléchissant a été déposé sur une partie neutre de la face supérieure.

Divers essais ont été réalisés afin de fixer entre elles ces deux parties de l'ensemble optique réglées de manière adéquate :

- Dans une première tentative on a introduit, entre les deux faces des parties à assembler, une fine couche de colle optique polimérisable sous rayonnement UV , ce rayonnement étant donc appliqué après avoir réglé correctement les pièces optiques. Bien que des essais préliminaires, effectués sur des lames à faces parallèles aient donné de bons résultats, cette méthode s'est avérée inefficace pour le montage du prisme ; en effet, après une période de stabilisation de l'ensemble optique, certaines contraintes importantes, introduisant de la biréfringence, sont apparues.

Au cours d'autres essais divers, nous avons constaté que la qualité du traitement métallique et de la couche protectrice permettaient de fixer le prisme par adhérence optique. C'est finalement cette méthode de fixation que nous avons utilisée , l'approche progressive des deux éléments étant réalisée en maintenant la différence de marche au voisinage de zéro jusqu'à ce que l'adhérence s' amorce . Bien qu'extrêmement délicate, cette méthode d'assemblage s'est avérée très safisfaisante. Elle a l'avantage de n'introduire aucun milieu intermédiaire (colle optique ou liquide) dont l'indice de réfraction et la dispersion, différents de ceux du verre, pourraient affecter l'achromatisme de l'instrument dans le cas de fortes épaisseurs (quelques μ). L'achromatisme final de l'ensemble optique a été testé pour différentes longueurs d'ondes (couvrant un intervalle spectral de 458 à 731 nm) ; les résultats de cette expérience seront exposés au chapitre mesure

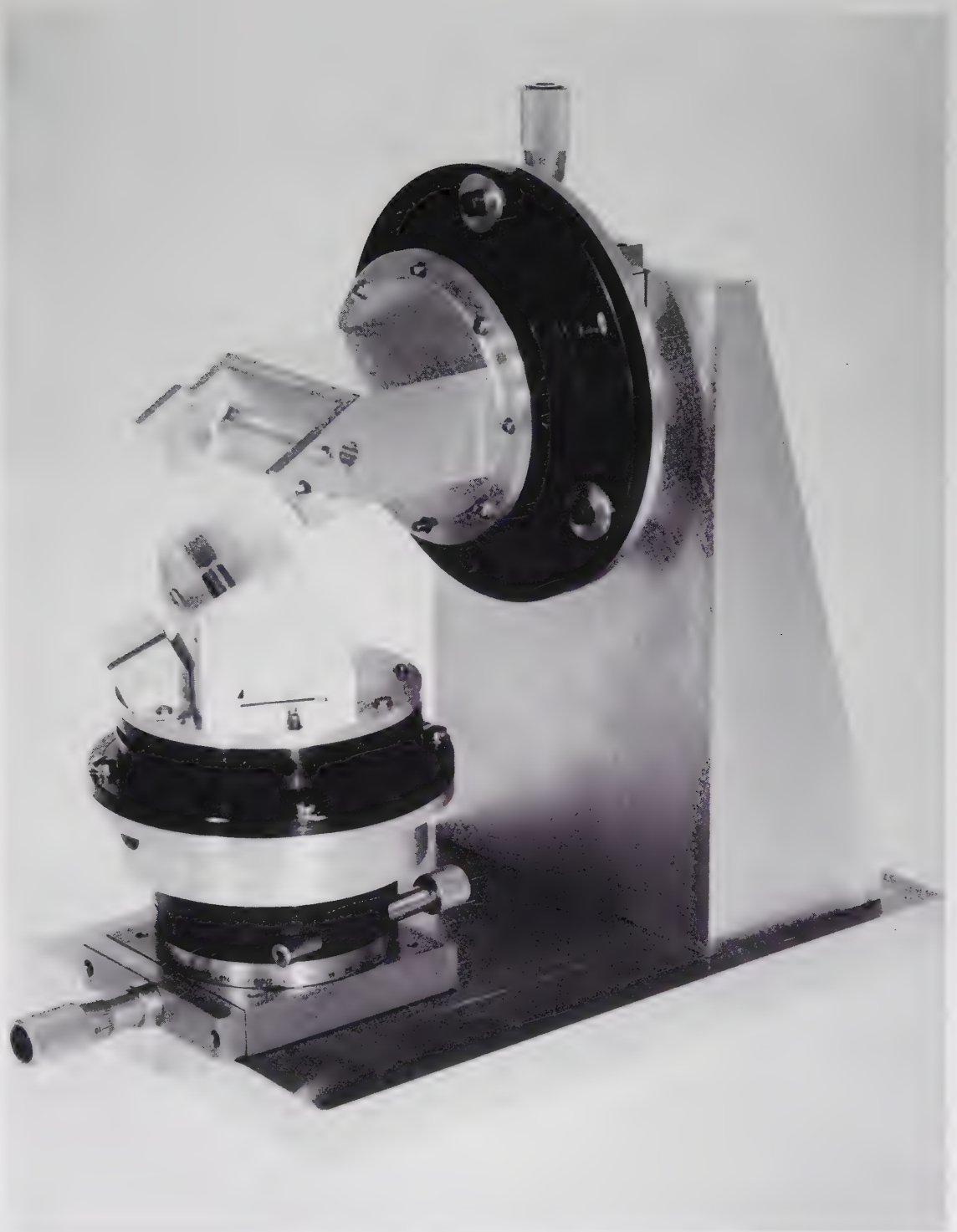


Figure 5

Ensemble mécanique destiné au montage du bloc optique
sous contrôle interférométrique.

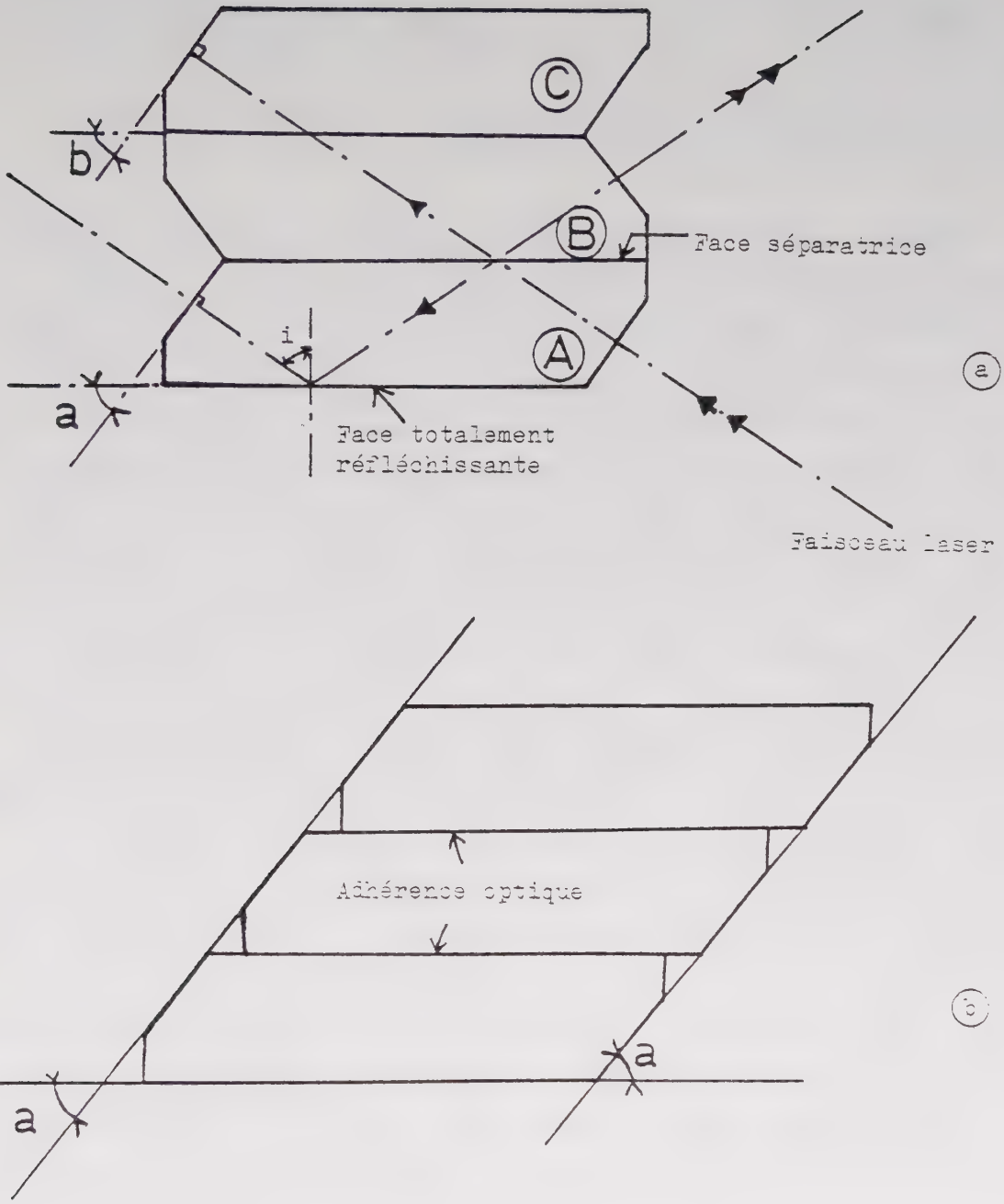


Figure 6

a) Autre géométrie pour l'ensemble optique.

b) Montage des lames.

d) Autre géométrie possible.

Les difficultés expérimentales, rencontrées lors de la réalisation de l'ensemble optique et plus particulièrement celles qui concernent le polissage des faces et la précision de chaque angle, nous ont amené à concevoir un autre type d'ensemble optique, tout aussi compact, mais dont la réalisation est beaucoup plus simple. La géométrie de cet ensemble est représentée sur la Figure 6a.

L'un des bras de l'interféromètre comprend, bien entendu, une réflexion totale verre-air et l'ensemble est composé de trois lames à faces parallèles d'épaisseur identique obtenues en fait à partie d'une même lame à face parallèle partagée sur trois parties. Mise à part la condition essentielle concernant l'achromatisme de la différence de marche qui, comme auparavant, doit être ajustée sous contrôle interférométrique, dans cette configuration la seule autre condition pour obtenir un bloc optique achromatique est que les angles $\hat{a}$ et $\hat{b}$ soit rigoureusement identiques pour que leur image respective à travers la séparatrice puisse coïncider lors de l'ajustement de la compensation des différences de marche. Contrairement au système précédent, la valeur proprement dite des angles et leur précision importe peu pourvu qu'ils soient identiques, ce qui laisse un plus grand choix sur les types de verre susceptibles d'être utilisés et n'impose pas l'utilisation de cale d'angle (une précision de l'ordre de quelques minutes est largement suffisante et peut être facilement obtenue).

La condition que nous venons d'énoncer peut facilement être satisfaite, soit en polissant l'angle $\hat{a}$ avant le partage des lames, soit, si la largeur de ces lames ne permet pas d'effectuer ce polissage dans de bonnes conditions, en les superposant comme le montre la Figure (6b).

Le montage de l'ensemble se fait en deux étapes : Après avoir déposé la couche semi-réfléchissante sur une face de la pièce A , on fixe les pièces A et B entre elles par adhérence moléculaire sans réglage

précis ... ; la pièce C par contre est fixée par adhérence moléculaire sur l'ensemble A + B sous contrôle interférométrique d'une façon analogue à celle décrite pour le bloc précédent : les deux faces à adhérer étant nues, ce réglage peut se faire plus commodément en déposant préalablement une goutte d'eau sur l'une des faces, ce qui permet de conserver une certaine souplesse pendant le réglage.

Après avoir ajusté la différence de marche de l'interféromètre formé par le bloc seul au voisinage de zéro en observant les cannelures produites par une source de lumière blanche qui le traverse , on ajuste le réglage de manière définitive en observant les teintes de Newton caractéristiques . L'épaisseur de la couche d'eau (initialement très fine) diminue au fur et à mesure que l'eau s'évapore , ce qui approche entre elles les deux faces sans dérégler notablement l'interféromètre. L'épaisseur de la couche diminuant, les tensions moléculaires deviennent de plus en plus importantes (l'adhérence s'amorce) et le réglage devient de moins en moins sensible. Ceci s'effectue pendant un temps suffisamment long pour que celui-ci puisse être éventuellement réajusté (manuellement) avant l'adhérence complète.

Un tel ensemble est utilisé dans un sigmamètre de moyenne résolution décrit dans la thèse de F. MOUSSELY [24].

2 - L'ENSEMBLE MECANIQUE.

La Figure (7) représente deux vues en coupe du sigmamètre. Celui-ci est placé sous vide, ce qui permet d'une part de s'affranchir des corrections dues aux variations de l'indice de l'air et, d'autre part,

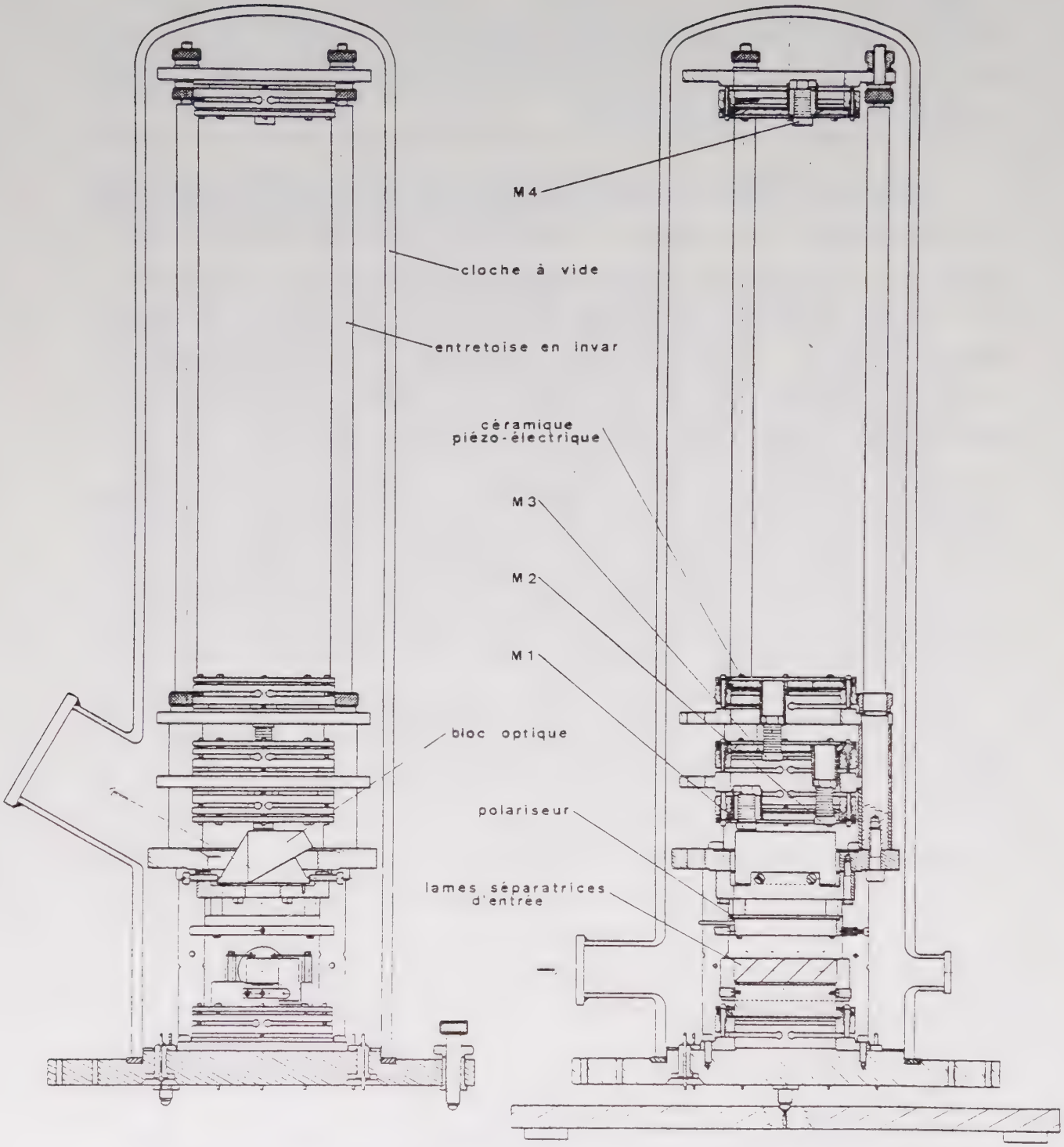


Figure 7

VUES EN COUPE DU SIGMAMETRE

d'améliorer la stabilité passive de l'appareil par rapport aux variations de température ou de pression ou encore aux perturbations acoustiques. (Les corrections dues aux variations de l'indice de l'air résiduel pour un vide primaire de l'ordre de 10^{-2} torr sont inférieures à 10^{-10} et sont donc tout à fait négligeables à notre échelle [25]). Quatre lames (à faces parallèles) sont fixées parallèlement entre elles sur un support réglable à la partie inférieure du sigmamètre et permettent de partager les faisceaux laser en quatre faisceaux parallèles qui, après avoir traversé un premier polariseur commun orienté à 45° par rapport au plan d'incidence de la réflexion totale définie au §.1, entrent respectivement dans chacun des interféromètres de différence de marche $\delta_1 = 0{,}1$ cm , $\delta_2 = 1$ cm , $\delta_3 = 10$ cm et $\delta_4 = 100$ cm . Pour des raisons pratiques, l'ensemble optique (compact pour chaque interféromètre) a été, en fait, réalisé en deux blocs séparés mais identiques : le premier appartient aux interféromètres de différence de marche δ_1 et δ_3 et le second aux interféromètres de différence de marche δ_2 et δ_4 . Ces blocs sont maintenus sur une platine en acier sur laquelle sont montées trois colonnes en invar. Sur ces colonnes, viennent se fixer quatre montures réglables qui supportent respectivement les miroirs M_{1-4} ; ceux-ci sont collés sur des cérapiques piézoélectriques afin de permettre la stabilisation active des différences de marche.

3 - OPTIQUE D'ENTREE DU SIGMAMETRE.

Au niveau de précision atteint par le sigmamètre, les erreurs, dues au mauvais alignement des faisceaux laser qui traversent les interféromètres ou encore aux déréglages des miroirs M_{1-4} , peuvent devenir très importantes. Pour minimiser ces sources d'erreurs, il est indispensable que tous les faisceaux laser suivent exactement le même trajet optique dans les interféromètres. Ce trajet optique est matérialisé par une

optique d'entrée dont les différents éléments sont disposés suivant le schéma de la Figure (8). L'adaptation des faisceaux dans le sigmamètre est assurée par un système afocal travaillant comme une lunette autocollimatrice et par divers diaphragmes de centrage des faisceaux. Ce système afocal permet d'autre part de réduire la divergence des faisceaux issus des lasers et donc les erreurs dues à la diffraction des faisceaux gaussiens (toutes ces sources d'erreurs seront étudiées en détail dans le chapitre qui leur est consacré). En effet, la divergence est donnée par $\frac{\lambda}{2\omega_0}$ où $2\omega_0$ représente la taille ("waist") du faisceau laser après traversée d'un système optique ; un système afocal permet d'augmenter ce paramètre. Une méthode complémentaire permettant un ajustement très précis de ce chemin optique sera décrite plus loin (Chap. IV, §.3).

Comme le montre le schéma de la Figure (8), un premier laser He-Ne, asservi sur une raie d'absorption saturée de la molécule d'iode à $\lambda = 633$ nm , sert à la fois comme première source de référence, connue à 10^{-9} près environ) pour la calibration des différences de marche du sigmamètre et comme source stable ($\approx 10^{-11}$) pour leur stabilisation. Le faisceau de ce premier laser He-Ne est donc partagé en deux ; la première moitié traverse le sigmamètre suivant le chemin optique principal défini ci-dessus (voie signal) ; la seconde moitié de ce faisceau suit un chemin optique parallèle au premier ; son réglage est moins critique que celui de la voie signal car celui-ci n'intervient pas directement dans la calibration des différences de marche mais uniquement dans leur stabilité ; ce réglage peut être fait une fois pour toutes.

La méthode, très simple; utilisée pour l'asservissement des différences de marche est décrite au §.5 .

Le second laser de référence représenté sur la Figure (8) est également un laser He-Ne asservi sur l'iode mais à $\lambda = 612$ nm ; il sert de deuxième source de référence connue à 10^{-9} près pour la calibration des différences de marche.

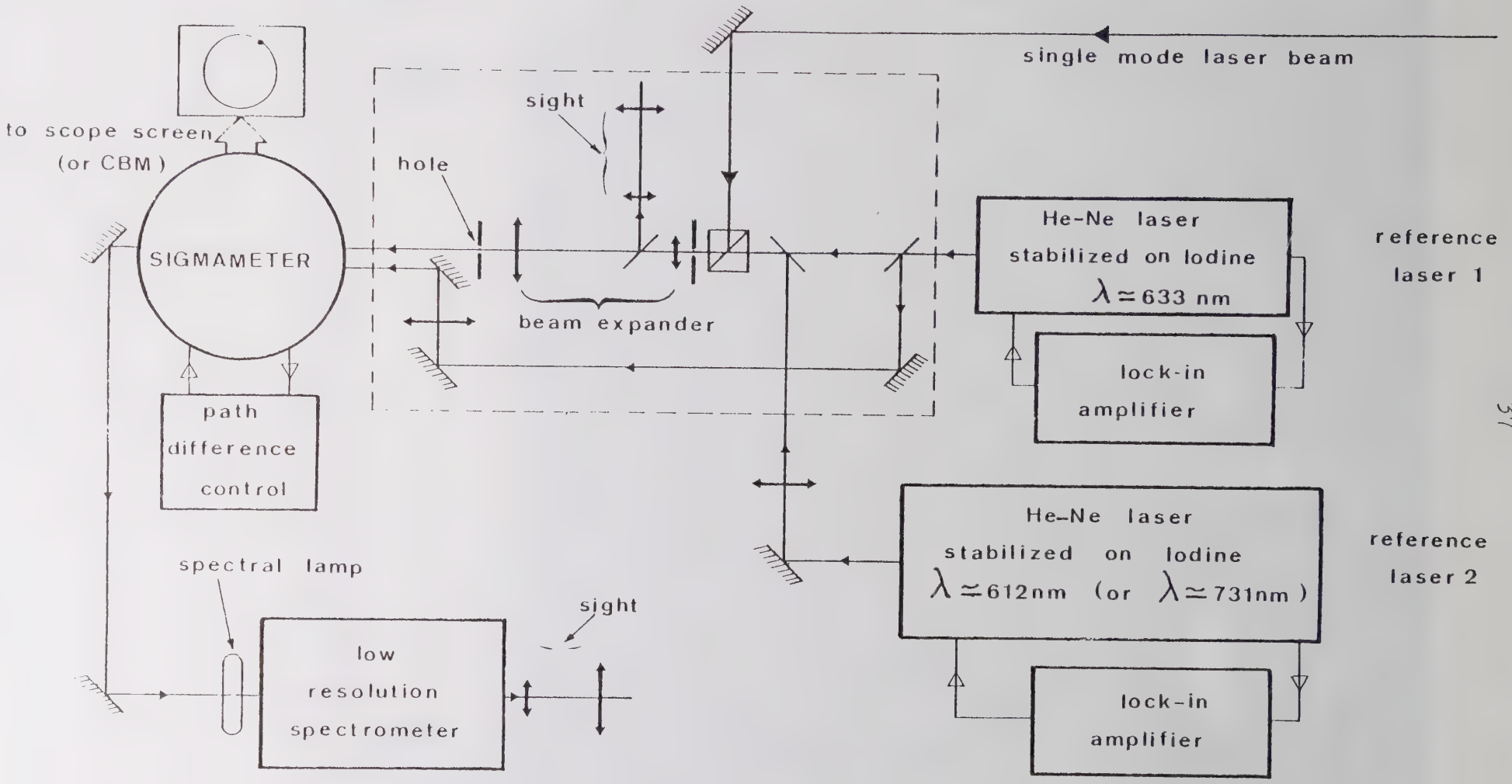


Figure 8 : Optique d'entrée du sigmamètre.

Les caractéristiques de ces deux lasers He-Ne asservis sur l'iode seront décrites avec plus de détails dans l'Annexe II.

4 - ENSEMBLE DETECTEURS.

La Figure (9) représente une photographie de l'ensemble de détection placé à la sortie du sigmamètre. Rappelons que plusieurs signaux doivent être détectés puisque le sigmamètre comprend quatre interféromètres ; chacun d'eux est traversé par deux faisceaux, l'un correspondant à la voie signal, l'autre à la voie asservissement et que celui correspondant à la voie signal doit, de plus, être partagé en deux fractions polarisées orthogonalement correspondant aux signaux $\cos 2\pi\sigma\delta$ et $\sin 2\pi\sigma\delta$. Cet ensemble comprend donc divers miroirs de renvoi, miroirs semi-réfléchissants, analyseurs (dont l'orientation est ajustée de manière très précise grâce à l'utilisation de supports réglables en rotation par un système de roue et vis sans fin) et, enfin, des détecteurs photosensibles. Il s'agit de photodiodes du type UDT 450 choisies pour leur grande sensibilité dans un domaine spectral très large, leur bonne linéarité et leur coût relativement faible. Par rapport à d'autres types de détecteurs, comme les photomultiplicateurs, ceux-ci ont l'avantage, non négligeable, d'être peu encombrants.

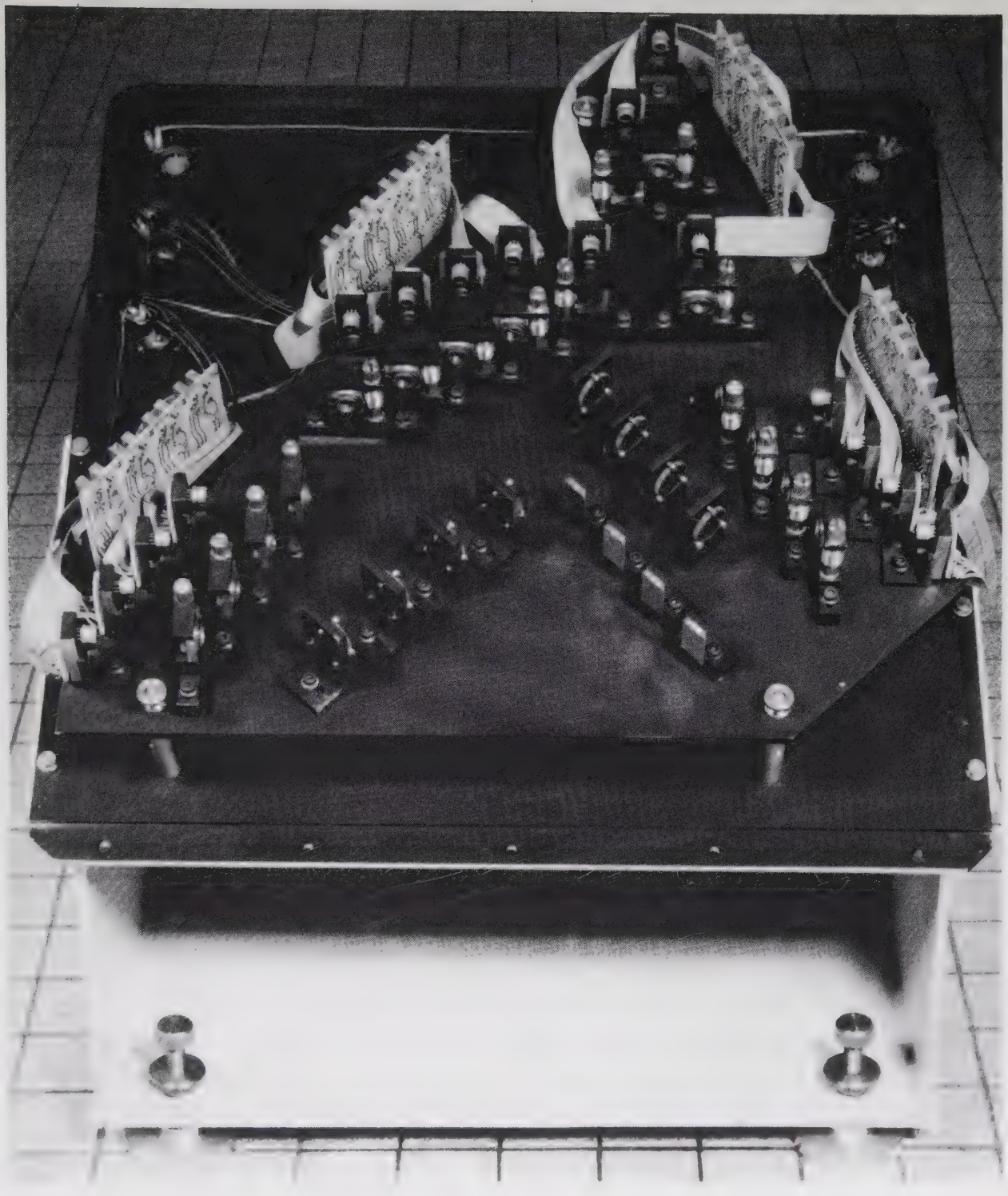


Figure 9

Ensemble détecteurs comprenant :

- les photodiodes type UDT 450,
- les analyseurs montés sur supports ajustables en rotation,
- les miroirs semi-réfléchissants et de renvoi.

5 - ASSERVISSEMENT DES DIFFERENCES DE MARCHE.

a) Description de la méthode.

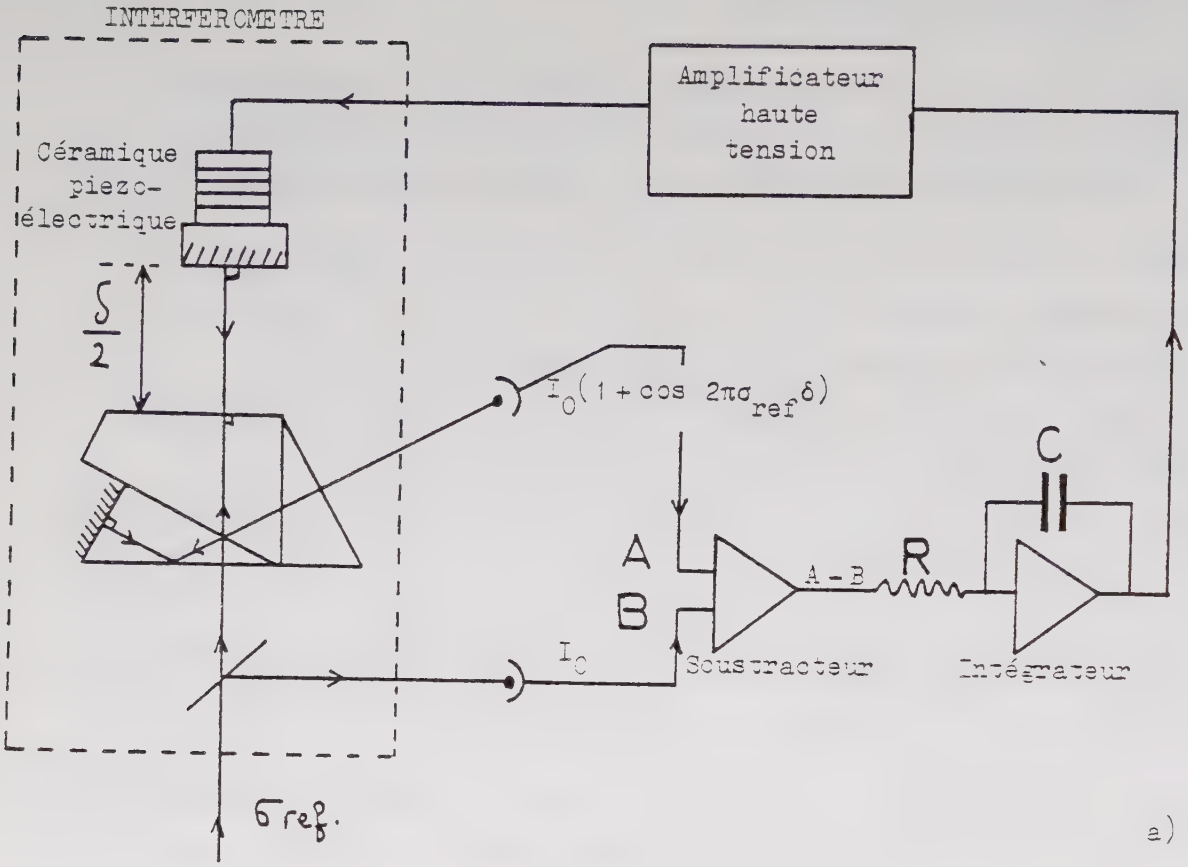
Comme nous l'avons déjà mentionné au Chapitre II, la stabilité des différences de marche δ_{1-4} doit être telle que $\frac{\Delta\delta}{\delta}$ soit inférieur à $\frac{\lambda}{100\delta}$. Cette condition est d'autant plus difficile à satisfaire que δ est grand mais, même pour $\delta_1 = 1$ mm, $\frac{\Delta\delta_1}{\delta_1}$ doit être inférieur à 6.10^{-6} environ, ce qui correspond déjà à une limite difficile à atteindre avec des systèmes passifs non contrôlés en température, pression, etc... C'est pourquoi nous avons préféré utiliser une stabilisation dynamique des quatre différences de marche en utilisant un laser He-Ne dont la fréquence est asservie sur une composante hyperfine d'une raie d'absorption saturée de la molécule d'iode.

Le principe, très simple, utilisé pour cet asservissement est schématisé sur la Figure 10a.

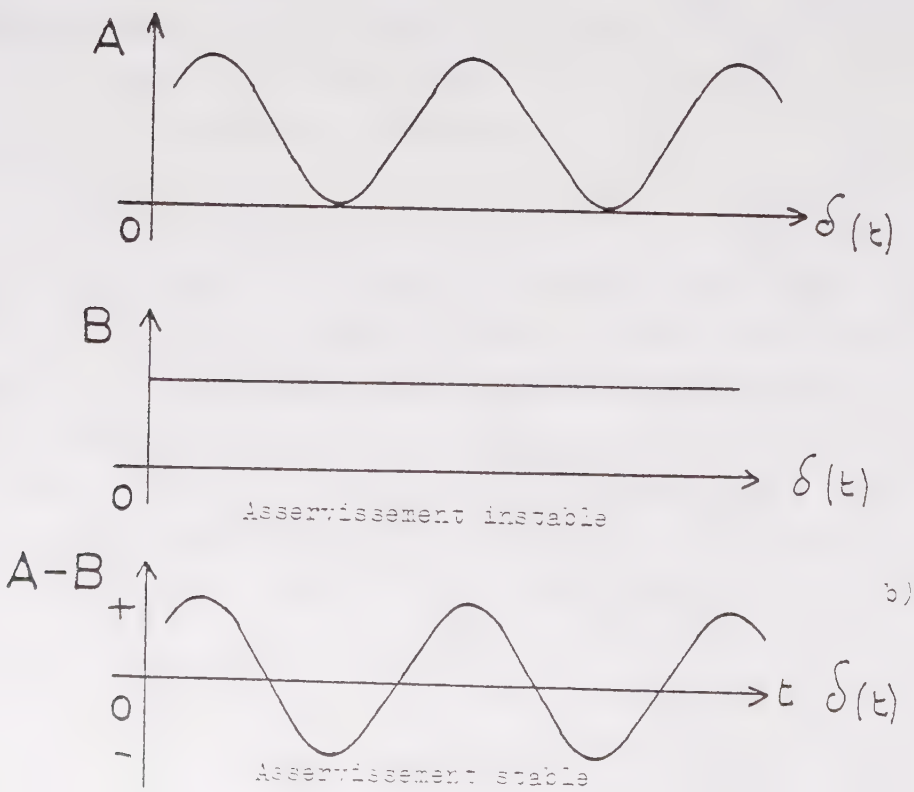
Une partie du faisceau issu du laser He-Ne ($\lambda = 633$ nm) traverse donc chaque interféromètre suivant un chemin optique parallèle au chemin optique principal défini au §.3. Du signal proportionnel à $I_0 (1 + \cos 2\pi\sigma_{ref}\delta)$, détecté à la sortie de chaque interféromètre, on soustrait la composante continue proportionnelle à l'intensité I_0 du laser de référence afin que la composante alternative $f(\delta) = I_0 \cos 2\pi\sigma_{ref}\delta$ soit toujours centrée en zéro quelles que soient les variations éventuelles de I_0, Fig. (10b). Cette composante alternative est directement appliquée comme signal d'erreur à l'entrée d'un intégrateur suivi d'un amplificateur haute tension suivant un schéma classique utilisé dans les systèmes d'asservissement linéaire, Fig. (10a) [26]. Au voisinage de la valeur zéro, la variation du signal d'erreur est approximativement linéaire avec σ et la pente $\frac{f(\delta)}{\delta}$ est maximale. En boucle fermée, la réponse dynamique et la précision de l'asservissement dépendent du produit R.C de l'intégrateur et du gain de l'amplificateur haute-tension.

Figure 10

Schéma de principe de l'asservissement des différences de marche.



a)



b)

Dans notre cas précis, nous cherchons simplement à compenser les dérives lentes de la longueur des différences de marche $\delta = f(t)$. Pour un instrument placé sous vide, ces dérives sont essentiellement dues aux variations de température ; les perturbations de fréquence plus rapide (acoustiques par exemple) affectent très peu la stabilité des interféromètres de conception relativement robuste. Le chois de la valeur du produit R.C de l'intégrateur et du gain de l'amplificateur haute-tension n'est donc pas très critique et l'on se placera toujours largement en dessous du seuil d'instabilité, par exemple lorsque le gain de la boucle d'asservissement est trop élevé ou à l'approche des fréquences de résonance des céramiques piézoélectriques. La précision atteinte par cet asservissement est estimée à 1/300ième de tour pour chaque interféromètre (ou $\lambda/300$), ce qui correspond à une stabilité de l'ordre de 2.10^{-9} , pour la quatrième différence de marche égale à 1 m ; ceci est suffisant pour effectuer des mesures à une précision de l'ordre de 10^{-8} dans de bonnes conditions.

b) Remarque :

En fait, cette stabilité n'est rigoureuse que pour la différence de marche "vue" par le faisceau de référence utilisé dans cet asservissement. Si la dilatation de la céramique, en fonction de la tension qui lui est appliquée, s'accompagne également d'une légère rotation de celle-ci, la différence de marche "vue" par le faisceau principal peut alors être légèrement différente (pour une distance typique environ égale à 7 mm entre les deux faisceaux parallèles, l'erreur sera de l'ordre de 1/100ème de tour pour une rotation $\alpha = 0,1$ seconde d'arc). Bien que ce défaut soit minimisé avec des céramiques composées d'empilement de plusieurs rondelles (la moyenne des effets dus à chacune d'elles s'annulant en quelque sorte), la présence d'un tel défaut a pu être mis en évidence sur la quatrième différence de marche de notre appareil. Toutefois l'erreur systématique entraînée par ce défaut sera facilement corrigée puisque le faisceau du laser de référence utilisé pour l'asservissement emprunte également la voie principale destinée aux mesures

proprement dites, y compris celles concernant la calibration des différences de marche.

La correction peut alors se faire de deux manières :

- ou bien la valeur de l'excédent fractionnaire correspondant à l'un des σ de référence est modifiée et l'on corrige la valeur de la différence de marche ;

- ou l'on injecte dans la boucle d'asservissement des différences de marche une composante continue qui ramène la valeur de l'excédent fractionnaire à celle précédemment lue.

c) Dynamique du système.

Un autre paramètre important des systèmes asservis concerne la dynamique totale de la compensation des différences de marche des interféromètres. En supposant que la stabilité passive des interféromètres soit de l'ordre de $10^{-6}/°C$ (ce qui correspond approximativement au coefficient de dilatation de l'invar), la variation $\Delta\delta_4$ de la quatrième différence de marche, par exemple, sera de l'ordre de $1\mu/°C$ (plus d'un tour sur les écrans d'affichage) ; or l'amplitude des variations de température enregistrée au cours d'une journée entière peut atteindre plusieurs degrés. L'excursion totale des céramiques piézoélectriques (ou plus particulièrement celle de la quatrième différence de marche) devra donc être de plusieurs microns. Les céramiques piézoélectriques (Quartz et Silice) sont composées d'un empilement de 10 rondelles de 2 mm d'épaisseur (matériau $P_4.68$ choisi pour sa grande sensibilité). L'amplitude des variations de l'épaisseur de l'empilement est de l'ordre de 5 μ pour une tension appliquée de 1000 V.

Pour terminer ce chapitre consacré à l'appareil, une partie du dispositif expérimental est présentée sur la Figure (11). Les lasers de référence utilisés pour la calibration ou l'asservissement des différences de marche ne figurent pas sur cette photographie. Ce dispositif expérimental comprend d'autre part un miniordinateur du type CBM série

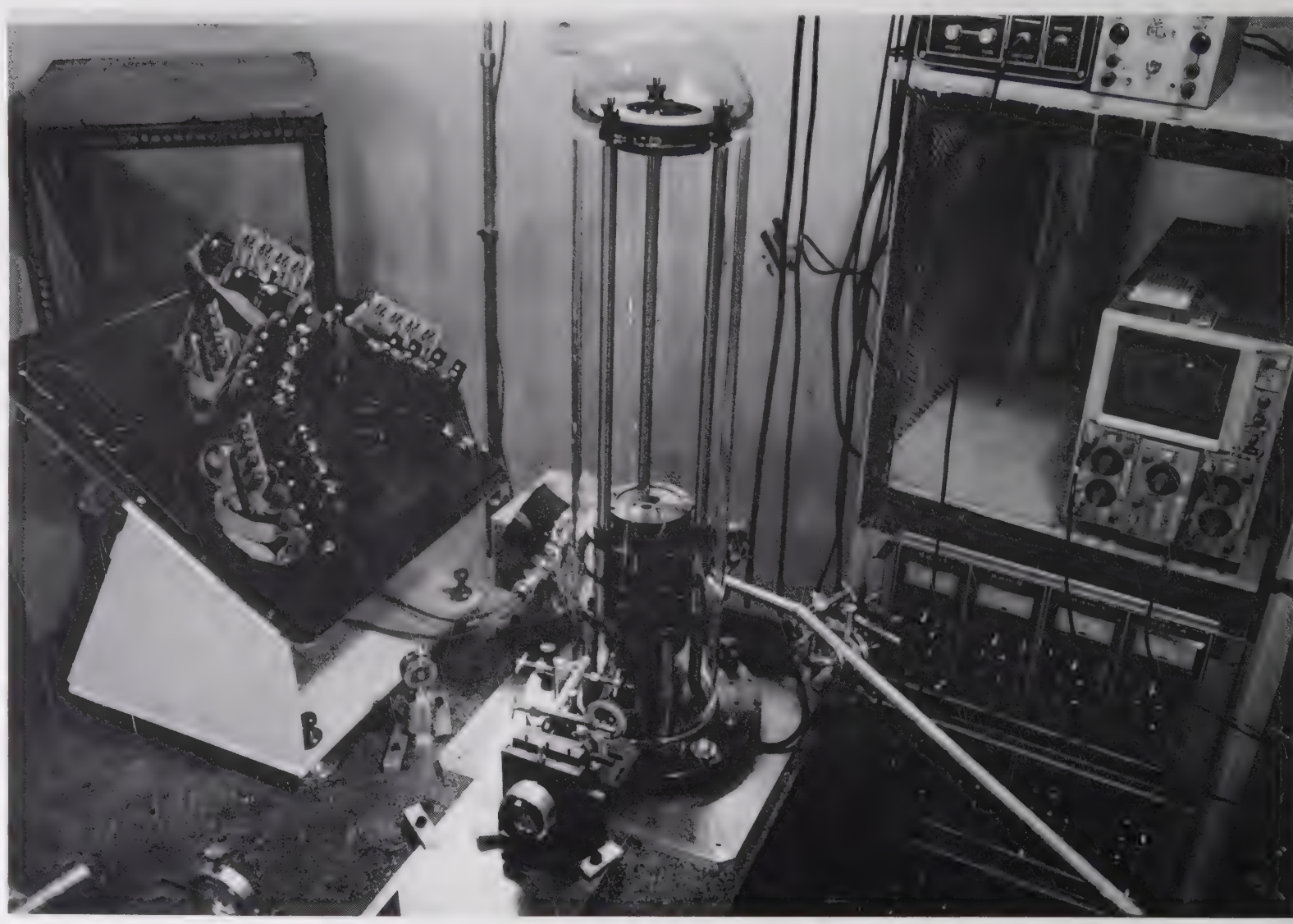


Figure 11 : Vue d'ensemble d'une partie du montage expérimental :

- au centre : le sigmamètre placé sous vide,
- à gauche : l'ensemble détecteur,
- à droite : vue de l'électronique d'asservissement et de mesure.

3000 utilisé, en ligne, pour le calcul des différences de marche ou des nombres d'ondes à partir de la valeur de l'excédent fractionnaire donné par chaque interféromètre du sigmamètre.

IV - MESURES.

1 - INTRODUCTION.

Comme l'exige le principe du sigmamètre, avant toute mesure absolue de nombre d'ondes il est nécessaire de calibrer les différences de marche des interféromètres. La calibration totale de l'appareil pose un problème dans la mesure où elle demande un certain nombre (au moins 4) de sources de référence dont les nombres d'ondes sont connus avec la précision recherchée, c'est-à-dire 10^{-9}. En fait, l'utilisation de sources spectrales classiques n'est pas adaptée à notre appareil et, tout à son début, seul le laser He-Ne asservi sur l'iode (à $\lambda = 633$ nm) convenait à ce problème. Nous avons donc été amené à mettre au point plusieurs autres sources de référence. Ce problème sera traité au paragraphe 3.

Au paragraphe suivant, nous décrirons une expérience dont le but était de s'assurer de l'achromatisme de l'instrument. Vu le nombre restreint de raies laser de référence, il n'était pas pensable de réaliser cette expérience sur l'ensemble de l'appareil ; elle a été faite sur l'interféromètre de plus faible différence de marche en utilisant plusieurs raies données par des lasers multimodes à argon, krypton ou He-Ne . Comme nous le verrons, les résultats d'une telle expérience peuvent être aisément étendus à l'ensemble de l'interféromètre.

Le paragraphe 5 est consacré aux mesures proprement dites de nombres d'ondes issus de lasers monomodes continus dont la fréquence est

successivement asservie (par absorption saturée), sur diverses raies du néon 20 ; il s'agit de mesures à haute résolution.

Le dernier paragraphe de ce chapitre consacré aux mesures, décrit une expérience permettant de tester l'instrument en tant que mesureur de nombres d'ondes issus de lasers fonctionnant en impulsions. Toutes ces mesures ont été déduites des valeurs des excédents fractionnaires ε_i (ou de phases φ_i) mesurés sur l'écran d'un oscilloscope servant d'affichage et sur lequel on a centré une échelle circulaire graduée de 0 à 100 sur 2πrad(*). Avant d'aborder en détail la description de ces différentes mesures, nous allons étudier dans le paragraphe suivant une erreur systématique périodique sur la mesure des excédents fractionnaires (erreur entraînée par une réflexion parasite). Ces mesures devant être corrigées avant de servir dans un calcul donné, il nous a semblé plus logique d'étudier cette source d'erreurs systématiques dès le début de ce chapitre consacré aux mesures plutôt que dans celui consacré aux autres types d'erreurs.

(*) Cette lecture "visuelle" a été récemment remplacée par un traitement purement électronique des signaux électriques détectés à la sortie du sigmamètre à l'aide d'un mini-ordinateur et d'une électronique appropriée servant d'interface entre de sigmamètre et le mini-ordinateur. Ce traitement est utilisé dans deux programmes de calcul effectués successivement : le premier d'entre eux concerne la calibration des différences de marche des interféromètres suivant la méthode décrite plus loin ; les valeurs ainsi calculées sont mises en mémoire. Le second programme concerne les mesures proprement dites de nombres d'ondes.

2 - CORRECTION SUR LA LECTURE DES EXCEDENTS FRACTIONNAIRES.

Le sigmamètre, tel qu'il est conçu, utilise un ensemble optique compact dont les fonctions multiples ont été décrites au premier paragraphe du second chapitre ; en particulier nous avons vu que le miroir M_0 , commun à tous les interféromètres est, en fait, constitué de l'une des faces de l'ensemble optique sur laquelle on a déposé une couche métallique totalement réfléchissante (voir Fig. 4). Cette conception favorise certainement la stabilité passive de l'interféromètre mais, en procédant de cette manière, on introduit une dissymétrie entre les deux bras de l'interféromètre : en effet l'ensemble réflecteur de l'autre bras est alors constitué d'un miroir (M_n) et d'une interface air-verre (face supérieure du bloc optique) placée parallèlement à une distance $\delta'/2$ du miroir M_n (avec, par construction, $\delta'/2 \simeq \delta/2$). La présence de cette interface, dont le coefficient de réflexion $R = \left(\frac{n-1}{n+1}\right)^2$ ne peut être négligé, perturbe légèrement les interférences à la sortie de l'appareil entraînant une erreur sur la mesure des phases $\varphi = 2\pi\sigma\delta$. Dans le cas présent, cet effet ne peut être évité ; cependant l'erreur systématique qu'il entraîne (et que l'on peut observer expérimentalement) peut facilement être corrigée. Cet effet introduit une non-linéarité périodique de la phase φ en fonction de σ avec une période égale à $1/\delta$. La phase mesurée sur l'écran d'oscilloscope doit être corrigée d'une valeur θ donnée par les relations suivantes (dont le calcul est reporté en Annexe I) :

$$\varphi_{\text{linéaire}} = \varphi_{\text{mesuré}} - \theta$$

$$\theta = 2\,\text{Arctg}\,\frac{-\sqrt{R}\,\sin(\varphi-\theta_0)}{1-\sqrt{R}\,\cos(\varphi-\theta_0)} \qquad (8)$$

θ_0 correspond à la phase pour laquelle θ est égal à zéro. Pour $n = 1{,}6575$ l'erreur maximum θ_{max} (calculée à partir de (8)) correspond à un angle approximativement égal à 29° (8% de 2π). La valeur mesurée expérimentalement est légèrement plus faible :

$\theta_{max} = 6\%$ de 2π .

θ_0 est déterminé expérimentalement et sa variation en fonction de λ dépend de la précision avec laquelle l'achromatisme de la différence de marche a été réalisé (voir Annexe I). Nous avons trouvé que la variation de θ_0 était inférieure à 60° dans l'intervalle spectral que nous avons étudié (450 à 730 nm). Cette correction est faible et peut facilement être prise en compte lors de la correction exposée ci-dessus.

Bien entendu ce défaut de linéarité peut également être supprimé par un traitement anti-reflet déposé sur la face supérieure de l'ensemble optique. Cependant, pour des raisons d'achromatisme, il est nécessaire de conserver la symétrie de cet ensemble optique et donc un traitement analogue doit être également effectué sur l'interface de l'autre bras de l'interféromètre (image de la première à travers la séparatrice). Nous avons vu que, dans notre appareil, cette face possède une couche métallique totalement réfléchissante jouant le rôle de miroir commun M_0 à tous les interféromètres. Plutôt que de l'enlever et modifier notablement l'ensemble mécanique existant, nous avons préféré corriger l'erreur systématique définie plus haut en utilisant des courbes de corrections reproduites sur la Figure (12). Ces courbes ont été déterminées expérimentalement soit en mesurant, pour les trois premières différences de marche, la correction relative de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ du nombre d'ondes d'un laser à colorant dont on fait varier la fréquence de manière continue ou par sauts de modes calibrés, soit, pour la quatrième différence de marche, en mesurant les écarts relatifs (connus avec une précision < 1 MHz) des composantes hyperfines d'une raie d'absorption saturée de la molécule d'iode.

Ces corrections sont de faible amplitude et peuvent être effectuées avec une suffisamment bonne précision pour que l'erreur résiduelle puisse être tout à fait négligée au niveau final de la précision des mesures.

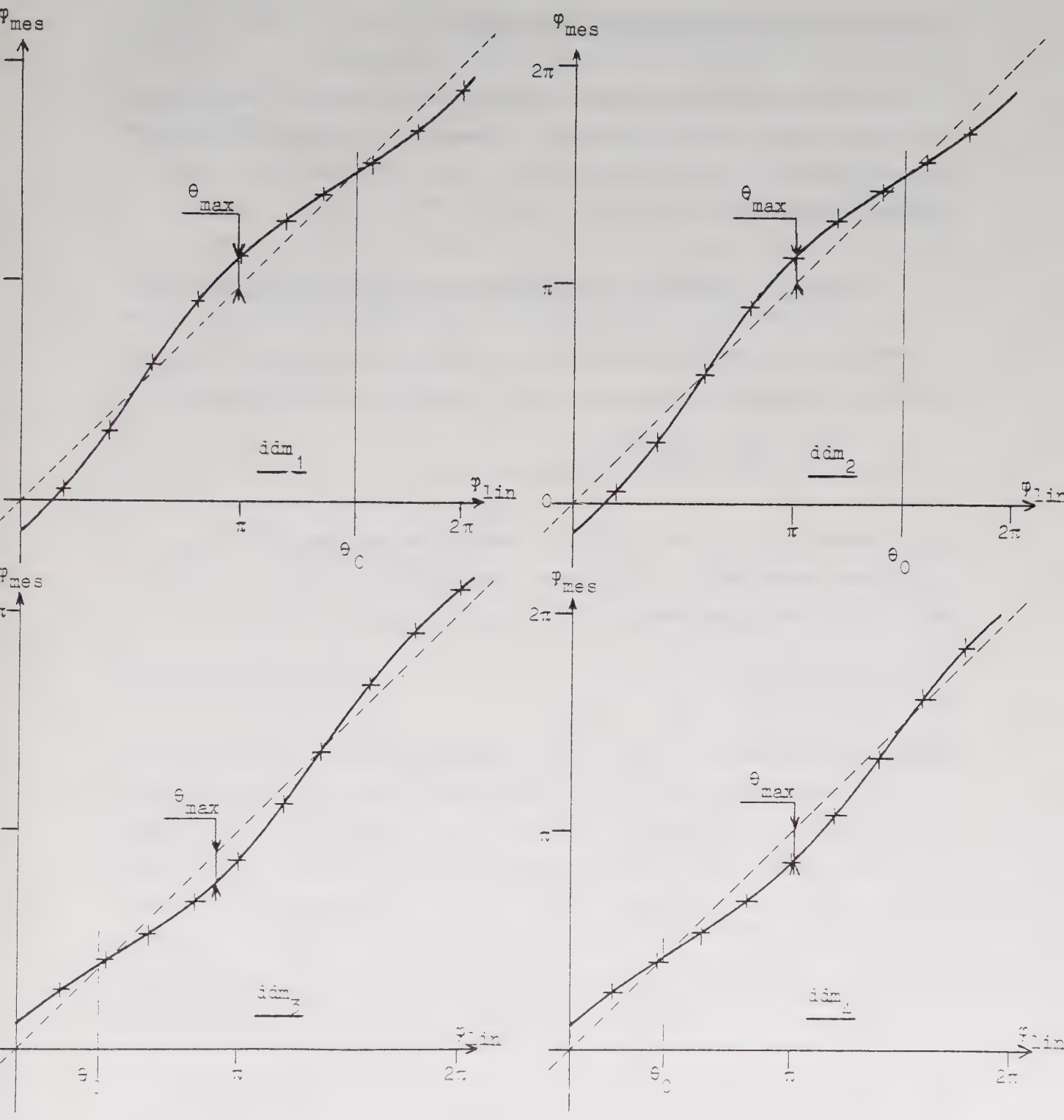


Figure 12

Détermination expérimentale de l'écart à la loi linéaire de la phase mesurée $\varphi(\sigma)$ pour chaque différence de marche.

3 - CALIBRATION DES DIFFERENCES DE MARCHE.

Pour mesurer les différences de marche δ_n $(n = 1\text{-}4)$ des interféromètres contenus dans le sigmamètre, on utilise la méthote classique des excédents fractionnaires introduite, pour la première fois, par MICHELSON et BENOIT [27].

a) Rappel du principe de la méthode des excédents fractionnaires.

Pour une différence de marche δ_n donnée, les nombres d'ondes de plusieurs sources de référence $\sigma_{i,j,\ldots}$ satisfont les relations :

$$\delta_n = \frac{k_{n_i} + \varepsilon_{n_i}}{\sigma_i} = \frac{k_{n_j} + \varepsilon_{n_j}}{\sigma_j} = \ldots \qquad (9)$$

k_{n_i} représente la partie entière de l'ordre d'interférence et ε_{n_i} l'excédent fractionnaire mesuré sur l'écran d'oscilloscope.
De (9) on déduit, par exemple :

$$k_{n_j} = \frac{\sigma_j}{\sigma_i}(k_{n_i} + \varepsilon_{n_i}) - \varepsilon_{n_j} \qquad (10)$$

où k_{n_i} varie entre

$$k_{n_{i_{min}}} = \frac{\delta_n - \Delta\delta_n}{\sigma_i}$$

et $$k_{n_{i_{max}}} = \frac{\delta_n + \Delta\delta_n}{\sigma_i} \quad ,$$

Δ_n représentant l'incertitude sur la valeur, a priori, de la différence de marche δ_n. De (10) on ne conserve que les k_{n_i} proches d'une valeur entière avec une incertitude Δk_{n_j}, elle même reliée, d'une part à l'incertitude sur la lecture des ε_{n_j} (approximativement 1%) et, d'autre part, à celle $(\Delta\sigma)$ sur la valeur des nombres d'ondes de référence σ_i, σ_j. Notons qu'à chaque $\Delta\sigma$ on peut faire correspondre une incertitude $\Delta\varphi = 2\pi\Delta\sigma\delta_n$ pour chaque différence de marche δ_n, cette incertitude pouvant être négligée la plupart du temps devant l'in-

certitude $2\pi\Delta\varepsilon$ (cas des sources de référence connues à une précision $\frac{\Delta\sigma}{\sigma} < 10^{-9}$). En utilisant plusieurs sources de référence $(\sigma_k, \sigma_\ell, \ldots)$ les équations (10) convergent rapidement vers une solution unique donnant la valeur de δ_n .

On pourra utiliser avantageusement une astuce de calcul permettant de localiser rapidement quelques valeurs approximatives possibles de la différence de marche δ_n (et situées dans l'intervalle $\pm\Delta\delta$) sans avoir à prendre en compte toutes les valeurs de k_{n_i} comprises entre $k_{n_{i_{min}}}$ et $k_{n_{i_{max}}}$. En effet, pour une différence de marche connue à $\pm 0{,}5$ mm près (cas de δ_4), k_{n_i} prend environ 1600 valeurs !

A partir de (9) on utilise également :

$$\delta_n = \frac{(k_{n_i} + \varepsilon_{n_i}) - (k_{n_j} + \varepsilon_{n_j})}{\sigma_i - \sigma_j} \qquad (11)$$

que l'on peut écrire sous la forme :

$$\delta_n = \frac{\Delta k_n - \Delta\varepsilon_n}{\Delta\sigma} \qquad (12)$$

où la longueur d'onde correspondant) $\frac{1}{\Delta\sigma} = \frac{1}{\sigma_i - \sigma_j}$ représente, en quelque sorte, le pas avec lequel on localise δ_n . Ce pas est d'autant plus grand que $\Delta\sigma$ est petit (donnant également une faible valeur à Δk). Cependant la précision sur les valeurs possibles de δ_n sera, quant à elle, d'autant plus faible. En utilisant des $\sigma_i - \sigma_j$ de plus en plus grands, on resserre l'incertitude sur les divers δ_n en éliminant au fur et à mesure le nombre de solutions possibles ; l'ultime précision correspondant à une solution unique étant donnée par (9).

Dans la pratique seulement quatre nombres d'ondes connus avec une précision $\frac{\Delta\sigma}{\sigma}$ de l'ordre de 10^{-9} , ont été suffisants pour calibrer les quatre différences de marche de notre appareil (l'incertitude $\Delta\sigma$ de ces nombres d'ondes étant petite, celle correspondante à $\Delta\varphi$ peut être négligée par rapport à $\Delta\varepsilon$ et les équations (10) convergent plus

rapidement). Pour la mesure de grandes différences de marche, de l'ordre du mètre, si seule une longueur d'onde de référence est connue à 10^{-9} près et les autres avec une précision moins bonne, les équations (10) convergent moins vite car on ne peut plus négliger $\Delta\sigma$ devant $\Delta\varepsilon$; il est alors nécessaire d'utiliser un plus grand nombre de sources de référence secondaires, ce qui alourdit d'autant la méthode de mesure au risque de devenir tout à fait inopérante.

b) Sources de références.

Comme nous l'avons souligné dans l'introduction, au début de la mise au point de notre instrument, la seule longueur d'onde (visible) issue d'un laser monomode, qui avait pu être mesurée de manière absolue par rapport à la longueur d'onde étalon (orangée) du krypton avec une incertitude correspondant essentiellement à celle de l'étalon primaire (4.10^{-9}) , était celle fournie par un laser He-Ne à $\lambda = 633$ nm dont la fréquence était asservie, par absorption saturée, sur la composante hyperfine "i" de la raie 127R(11-5) de la molécule d'iode [28]. Plus tard, d'autres mesures analogues ont été effectuées sur d'autres raies issues de lasers à He-Ne [29], à argon [30] ou à krypton [31]. Notre appareil étant mal adapté à l'utilisation de sources spectrales classiques, une partie importante de ce travail a consisté en la recherche et la mesure très précise d'autres sources de références laser dont la mise en oeuvre doit être aussi simple que possible et dont le nombre d'ondes doit être connu avec une précision de l'ordre de 10^{-9}.

Nous ne donnons ici que les caractéristiques principales de chaque source de référence utilisée ; leur description détaillée est reportée en Annexe II et III. Toutes ces sources sont issues de lasers monomodes continus et dont la fréquence est asservie sur une composante hyperfine d'une raie d'absorption saturée de la molécule d'iode 127.

- La première référence est donnée par un laser He-Ne à 633 nm (transition $3S_2 \rightarrow 2P_4$ du néon suivant la notation Paschen). La fréquence de ce laser (monomode) est asservie sur le pic "b" de la raie 127R(11-5)

dont le nombre d'ondes correspondant est égal à :

$$\sigma_1 = 15798{,}01271(1)\ cm^{-1} \quad .$$

Cette valeur est calculée à partir de la valeur recommandée par le CCDM en 1973 [32] de la composante hyperfine "i" :

$$\lambda_i = 632\ 991\ 399{,}0\ Fm$$

Rappelons que ce premier laser est également utilisé comme source de référence stable pour l'asservissement des différences de marche du sigmamètre.

- La deuxième référence est également fournie par un laser He-Ne mais qui fonctionne à $\lambda = 612$ nm (transition $3S_2 \rightarrow 2P_6$ du néon) et dont la fréquence est asservie sur la composante hyperfine "i" de la raie 47R(9-2) :

$$\sigma_2 = 16340{,}65805(1)\ cm^{-1} \quad [29] \quad .$$

- Les deux dernières références sont issues d'un laser à colorant continu monomode et accordable (modèle 599/21 de Coherent) dont la fréquence est successivement asservie :

sur la composante "o" de la raie 114P(14-1)

$$\sigma_3 = 16956{,}14590(1)\ cm^{-1}$$

et sur la composante "n" de la raie 38P(15-2) :

$$\sigma_4 = 16973{,}37493(2)\ cm^{-1}$$

Ces deux dernières raies ont été choisies :

- d'une part parce qu'elles se situent dans le profil Doppler des raies D_1 et D_2 du sodium (voir Annexe III) ; on peut ainsi facilement centrer la fréquence du laser près de ces valeurs à l'aide d'une simple lampe spectrale et d'un monochromateur de très faible pouvoir de résolution,
- d'autre part parce que leur faible différence ($17{,}22903\ cm^{-1}$ soit $\Delta\lambda = 0{,}58$ nm) permet de localiser rapidement la valeur des différences de marche (voir : méthode des excédents fractionnaires).

TABLEAU 2

	reference wavenumbers	σ_1	σ_2	σ_3	σ_4
δ_1	ε meas.	.90	.77	.74	.70
	δ_1 determined cm	.1235405	.1235405	.1235409	.1235409
	δ_1 mean = .1235407 cm				
	ε calculated with δ_1 mean	.903	.774	.736	.698
	dispersion	+.003	+.004	-.004	-.002
δ_2	ε meas.	.66	.295	.085	.29
	δ_2 determined cm	1.0076758	1.0076757	1.0076758	1.0076767
	δ_2 mean = 1.0076760 cm				
	ε calculated with δ_2 mean	.663	.300	.089	.279
	dispersion	+.003	+.005	+.004	-.011
δ_3	ε meas.	.54	.14	.01	.07
	δ_3 determined cm	10.0653842	10.0653855	10.0653847	10.0653842
	δ_3 mean = 10.0653847 cm				
	ε calculated with δ_3 mean	.548	.126	.01	.078
	dispersion	+.008	-.014	.00	+.008
δ_4	ε meas.	.505	.995	.875	.255
	δ_4 determined cm	100.0315207	100.0315203	100.0315208	100.0315202
	δ_4 mean = 100.0315205 cm				
	ε calculated with δ_4 mean	.502	.999	.871	.259
	dispersion	-.003	+.004	-.004	+.004

c) Mesures.

Dans le Tableau 2 est rassemblée une série de mesures types données par les quatre sources de référence pour chaque différence de marche. La calibration finale de chacune d'elles est donnée par la moyenne des mesures.

En effectuant des mesures analogues sur plusieurs mois, nous avons pu tester la stabilité mécanique (passive) de notre appareil. Elle est telle qu'après une première calibration des différences de marche ayant nécessité les quatre sources de référence, seules deux de ces sources suffisent pour effectuer sans ambiguïté une nouvelle calibration. On utilise alors, commodément, les deux lasers He-Ne disponibles en permanence.

4 - ACHROMATISME DE L'INSTRUMENT (Mesure à basse résolution).

Comme nous l'avons décrit au Chap.II, la précision sur la mesure des excédents fractionnaires (affichés sur l'écran d'oscilloscope) est estimée à un centième de tour (ou un centième de frange). Pour que cette précision soit exempte d'erreur systématique dans un intervalle spectral couvrant le visible, il est indispensable que l'achromatisme de la différence de marche soit obtenue de manière rigoureuse.

Comme le montre la relation définie au §.1-c du Chapitre III

$$\pm \Delta e \; < \; \frac{\lambda}{\pm \Delta n . 200} \quad ,$$

la variation (en fonction de n) de la différence de marche, introduite par une erreur Δe sur la compensation des épaisseurs de verre, est indépendante de la longueur proprement dite de cette différence de marche.

TABLEAU 3

	Tabulated value (cm^{-1}) (Argon$^+$ and He-Ne lines)	ε calc.	ε meas.	dispersion
Ar^+	21831.09	.569	.587	+.018
	20981.13	.724	.741	+.017
	20486.69	.896	.894	-.002
	20135.10	.354	.352	-.002
	19926.06	.060	.047	-.013
	19429.79	.011	.008	-.003
He-Ne	16340.658	.225	.220	-.005
	15798.013	.565	.578	+.013
	13685.787	.985	.988	+.003

$\delta_1 = .12100034$ cm.

En tenant compte de cette remarque, il suffit donc de tester l'achromatisme de l'appareil pour une faible différence de marche. Dans ce cas, la précision sur la valeur (connue approximativement) de nombre d'ondes issu de laser à gaz, même non stabilisé ou multimode, est en général suffisante (pour $\delta_1 = 1$ mm il suffit d'une précision de l'ordre de quelques 10^{-6} ou 3 GHz). Ceci nous permet d'utiliser, comme source de référence, toutes les raies à notre disposition, c'est-à-dire celles fournies par un laser He-Ne ou un laser à argon ionisé. Ces raies couvrent un intervalle spectral de 450 nm à 730 nm, ce qui permet un test relativement rigoureux de l'achromatisme. Après avoir calibré la première différence de marche suivant la méthode décrite au paragraphe 3 , on compare, pour chacun des autres nombres d'ondes σ_i , la valeur de l'excédent fractionnaire ε_i mesuré avec celle calculée par le produit $\sigma_i\delta_1$ dont on extrait la partie fractionnaire. Comme le montre le Tableau III, la différence entre deux valeurs (pour un nombre d'ondes donné) ne dépasse pas 2% pour tous les cas étudiés.

5 - MESURE à HAUTE RESOLUTION.

Après avoir calibré les quatre différences de marche, il est très facile de mesurer la valeur du nombre d'ondes de radiation monochromatique délivrée par des lasers fonctionnant en continu ou en impulsion. La précision de mesure est donnée par l'interféromètre de plus grande différence de marche : soit de l'ordre de 10^{-8} pour $\delta_4 = 100$ cm.

a) Principe de la mesure.

Pour la première différence de marche ($\delta_1 \simeq 0{,}1$ cm) , la partie entière k_1 de l'ordre d'interférence $K = \sigma_0\delta_1$ est déterminée sans ambiguïté à partir de la valeur approximative σ_0 du nombre d'ondes à

mesurer ; cette valeur étant soit donnée par les tables, soit mesurée à l'aide d'un spectromètre de très faible pouvoir de résolution. L'incertitude sur cette valeur approximative doit, en fait, être inférieure à $\pm \frac{1}{2\delta_1}$ ($\frac{\Delta\sigma}{\sigma} \simeq \pm 3.10^{-6}$ pour $\delta_1 = 1$ mm et $\sigma = 16000$ cm^{-1}).

La mesure du premier excédent fractionnaire ε_1 permet une détermination plus précise (σ_1) du nombre d'ondes :

$$\sigma_1 = \frac{k_1 + \varepsilon_1}{\delta_1}$$

Cette nouvelle valeur (σ_1) , plus précise, permet à son tour de déterminer sans ambiguïté, la partie entière $\underline{k_2}$ de l'ordre d'interférence de la deuxième différence de marche ; en utilisant la mesure du deuxième excédent fractionnaire on a :

$$\sigma_2 = \frac{k_2 + \varepsilon_2}{\delta_2}$$

La même procédure est répétée avec δ_3 puis δ_4 d'où l'on tire la valeur la plus précise du nombre d'ondes inconnu.

D'une différence de marche (δ_i) à la suivante (δ_{i+1}) , la précision de la mesure est augmentée d'un facteur qui dépend de l'incertitude sur la mesure des excédents fractionnaires. Comme l'illustrent clairement les tableaux 1 et 2 , ce facteur peut être de l'ordre de 100. Ainsi un rapport 10 entre deux différences de marche consécutives, comme nous l'avons choisi pour notre appareil, est trop pessimiste. Cependant, pour ce premier appareil, que l'on peut considérer comme prototype, nous avons préféré prendre un facteur de sécurité. D'autre part, un rapport de 10 entre deux différences de marche consécutives est également plus didactique : en effet, si les valeurs des différences de marche sont exactement égales à 0,1 cm , 1 cm , 10 cm et 100 cm, chaque excédent fractionnaire lu sur l'écran d'oscilloscope servant d'affichage correspond alors exactement à un chiffre significatif du nombre d'ondes inconnu. Sa valeur peut alors être "lue" directement sans avoir à effectuer un calcul quelconque.

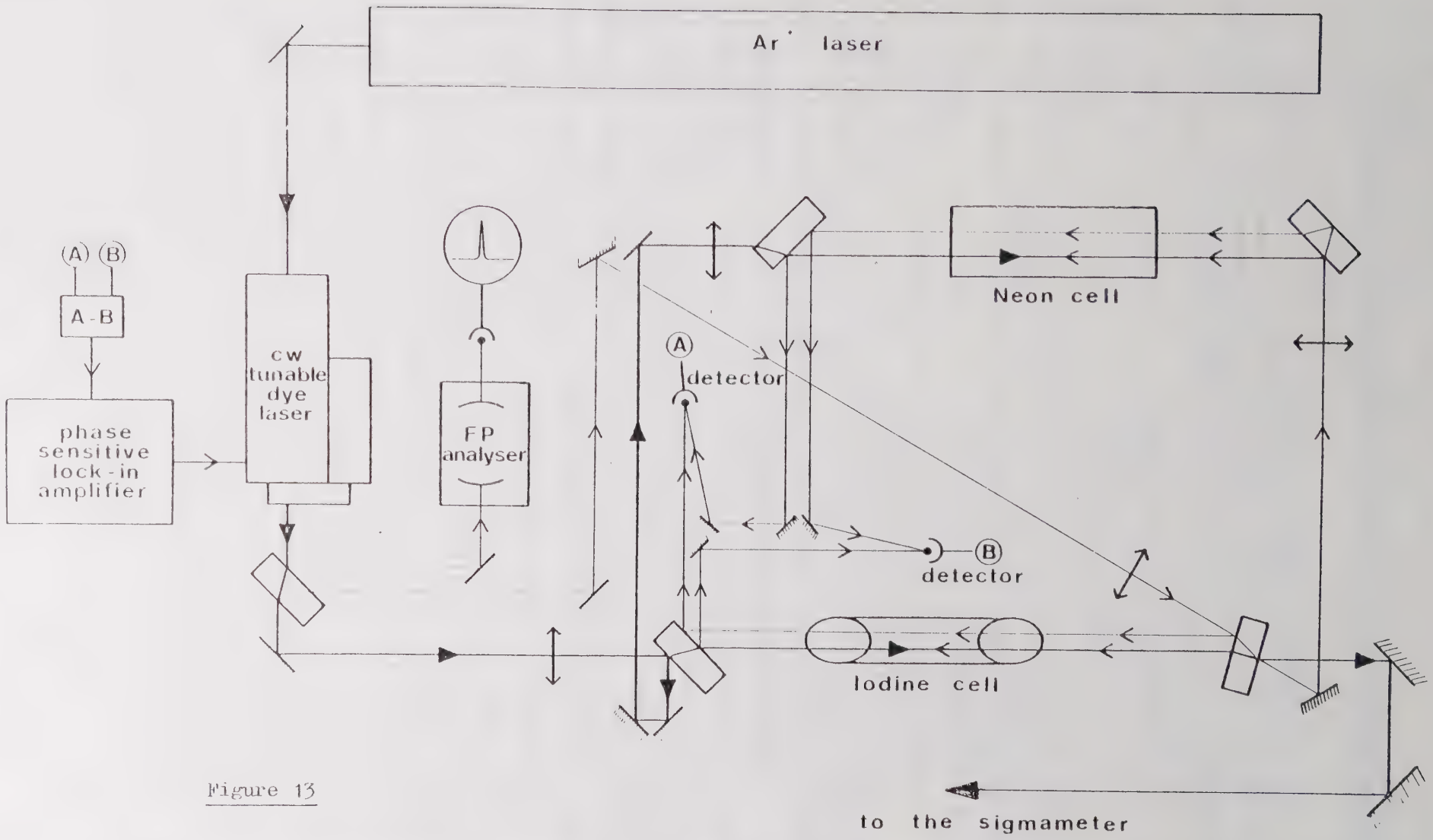


Figure 13

Double montage d'absorption saturée en cellules externes. La fréquence du laser (modulée à 5,6 KHz) peut être asservie sur une composante hyperfine de l'iode ou une transition du Néon 20.

Tabulated value (cm^{-1}) [33]		δ_1	δ_2	δ_3	δ_4	Calculated value of σ with δ_4 and ε_4 in cm^{-1}	Calculated value of ε_3 with the new value of σ
$1S_5 \rightarrow 2P_2$	ε calc.	.773	.078	.44			.436
16996.6124	ε meas.	.78	.06	.435	.92	16996.61178	.435
	dispersion	-.007	+.018	+.005			+.001
$1S_5 \rightarrow 2P_4$	ε calc.	.543	.753	.232			.216
16816.6679	ε meas.	.56	.755	.21	.70	16816.66630	.21
	dispersion	-.017	-.002	+.022			+.006
$1S_4 \rightarrow 2P_3$	ε calc.	.251	.476	.547			.539
16458.1436	ε meas.	.24	.485	.53	.055	16458.14286	.53
	dispersion	+.011	-.009	+.017			+.009
$1S_4 \rightarrow 2P_4$	ε calc.	.971	.101	.466			.448
16399.2208	ε meas.	.96	.10	.445	.81	16399.21898	.445
	dispersion	+.011	+.001	+.021			+.003
$1S_5 \rightarrow 2P_6$	ε calc.	.504	.941	.284			.269
16274.0212	ε meas.	.51	.92	.26	.94	16274.01975	.26
	dispersion	-.006	+.021	+.024			+.009
$1S_3 \rightarrow 2P_2$	ε calc.	.807	.315	.647			.638
16219.8119	ε meas.	.80	.32	.635	.365	16219.81108	.635
	dispersion	+.007	-.005	+.012			+.003

Tableau 4

b) Exemples de mesure de nombres d'ondes issus de lasers continus.

Nous présentons dans ce paragraphe la mesure de nombres d'ondes correspondant à quelques transitions optiques du Néon 20 ; ces mesures permettent de tester les performances de notre appareil.

Pour cela, nous utilisons un laser à colorant continu monomode et accordable (le même servant déjà de source de références secondaires pour la calibration des différences de marche : voir §.3). Il s'agit du modèle 599/21 de Coherent pompé par un laser à argon ionisé fonctionnant à $\lambda = 514{,}5$ nm . La puissance du laser de pompe est de l'ordre de 3 W, le colorant est de la Rhodamine 590 (ex. Rd.6G). Le fonctionnement en mode unique peut facilement être obtenu dans un intervalle spectral compris entre 570 et 620 nm ; la puissance disponible à la sortie du laser accordable est de l'ordre de 80 à 100 mW au milieu de cet intervalle spectral. Comme le montre le schéma de la Figure (13), nous utilisons un double montage d'absorption saturée en cellule externes. La première cellule contient de l'Iode 127 et la seconde du Néon 20. Cette technique permet d'asservir la fréquence du laser à colorant soit sur une composante hyperfine d'une raie d'absorption de l'iode, soit sur la composante saturée d'une raie du Néon 20 (voir Annexe III). Six raies comprises dans un intervalle spectral de 588,2 à 616,3 nm (transitions $1S \rightarrow 2P$) sont mesurées et une série de mesures types est présentée sur le Tableau 4 . La précision de la valeur tabulée de ces raies [33] correspond, dans le meilleur des cas à celle atteinte par la troisième différence de marche du sigmamètre (environ 10^{-7}). A l'aide de la quatrième différence de marche, celle-ci est donc augmentée d'un ordre de grandeur environ. Deux autres séries de mesures ont été effectuées à une semaine d'intervalle. Les résultats sont rassemblés sur le Tableau 5.

Entre deux séries de mesures, le réglage des faisceaux laser à l'entrée de l'interféromètre et la calibration des différences de marche sont refaits entièrement. A titre d'exemple, nous avons également

δ_4 in μ $(\vec{a})$	1 000 313,914	1 000 315,205	1 000 315,225

transitions ↓	σ measured in cm^{-1}			σ mean		precision $\times 10^{-9}$
$1S_5 \rightarrow 2P_2$	16996,61183	16996,61178	16996,61194	16996,61185	(5)	2.9
$1S_5 \rightarrow 2P_4$	16816,66636	16816,66630	16816,66637	16816,66634	(2)	1.2
$1S_4 \rightarrow 2P_3$	16458,14286	16458,14286	16458,14288	16458,14287	(1)	0.6
$1S_4 \rightarrow 2P_4$	16399,21906	16399,21898	16399,21906	16399,21903	(3)	1.8
$1S_5 \rightarrow 2P_6$	16274,01976	16274,01975	16274,01942	16274,01964	(11)	6.8
$1S_3 \rightarrow 2P_2$	16219,81102	16219,81108	16219,81076	16219,81095	(10)	6.2

TABLEAU 5

reporté, sur le Tableau 5, la valeur de la quatrième différence de marche pour chacune des séries de mesures. Celles-ci donnent une idée de la stabilité passive de notre appareil. Sur ce tableau on peut constater que l'incertitude d'une mesure unique (par comparaison avec la valeur moyenne) correspond à une précision de l'ordre de 10^{-8} . L'erreur standard de cette valeur moyenne donne une précision couramment meilleure que 3.10^{-9} . Nous décrivons au Chapitre VI d'autres types de séries de mesures atteignant des précisions analogues.

6 - MESURES DE NOMBRES D'ONDES DE RADIATIONS DELIVREES PAR DES LASERS FONCTIONNANT EN IMPULSIONS.

a) Introduction.

Comme nous l'avons mentionné dans l'introduction, une des propriétés les plus importantes du sigmamètre est de pouvoir effectuer des mesures de nombres d'ondes issus de lasers fonctionnant en impulsions. En effet, l'appareil ne comporte aucune pièce mobile. Ainsi, les deux signaux (détectés à la sortie de chaque interféromètre) ont leur amplitude crête respectivement proportionnelle à $\cos\varphi$ et $\sin\varphi$ de telle sorte que la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ peut être déterminée de la même façon qu'avec des signaux fournis par des lasers continus.

Bien entendu, pour des impulsions brèves, il faut tenir compte de la relation entre la longueur de cohérence (cohérence temporelle) de l'impulsion et la différence de marche de l'interféromètre. Conformément à la relation d'incertitude, il est impossible de mesurer avec une grande précision la fréquence de raies spectrales nécessairement larges comme celles délivrées par des impulsions laser très brèves.

Exemple numérique :

On a $\Delta t.\Delta\nu > \frac{1}{2\pi}$

pour $\Delta t \simeq 10^{-9}$ seconde

$\Delta x = c\Delta t$ est de l'ordre de 30 cm, qui correspond à la différence de marche maximum au-delà de laquelle il n'y a plus d'interférence possible entre les deux faisceaux réfléchis par les miroirs d'un interféromètre de Michelson. Dans cet exemple, la largeur spectrale de l'impulsion émise est égale à $1/2\pi\Delta t$, soit environ 160 MHz, ce qui correspond à la précision limite avec laquelle la fréquence de cette impulsion pourra être mesurée.

Dans la pratique, pour une différence de marche donnée, le contraste des franges à la sortie de l'interféromètre diminue pour des impulsions de plus en plus courtes. Le point caractérisant la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ qui, dans le cas de rayonnement continu, se situe sur un cercle de rayon unité, se trouvera alors sur un cercle de rayon de plus en plus petit (d'où une diminution correspondante de la précision de la mesure) pour devenir finalement un point centré en zéro lorsqu'il n'y a plus d'interférence possible et pour lequel on ne peut plus tirer d'information sur la fréquence de l'impulsion.

Cependant, notre appareil possédant quatre interféromètres distincts, on pourra toujours effectuer des mesures avec 4, 3, 2 ou seulement 1 interféromètre avec la précision respective ($\simeq \frac{1}{100\sigma\delta}$) atteinte par chacun d'entre eux.

b) Traitement électronique.

La mesure de nombres d'ondes, issus de lasers fonctionnant en impulsions, nécessite toutefois un traitement électronique supplémentaire des signaux $\cos\varphi$ et $\sin\varphi$ détectés à la sortie des interféromètres ainsi que celui correspondant au signal de référence proportionnel à I_0. Ce traitement est basé sur l'utilisation d'échantillonneurs bloqueurs

qui permettent de mémoriser l'amplitude maximum (proportionnelle à $\cos \varphi$, $\sin \varphi$ ou I_0) des impulsions détectées, et ceci pendant tout l'intervalle de temps séparant deux impulsions consécutives. Ces échantillonneurs doivent donc être commandés par un signal de synchronisation issu du laser fonctionnant en impulsions. Les signaux issus de ces échantillonneurs sont en fait quasiment continus et suivent, en particulier, linéairement les fluctuations d'intensités du laser d'une impulsion à l'autre. La suite du traitement électronique est donc identique à celui utilisé pour les signaux issus de lasers continus, soit :

- division des signaux $I_0 (1 + \cos 2\pi\sigma\delta)$ et $I_0 (1 + \sin 2\pi\sigma\delta)$ par un signal proportionnel à I_0 ;
- soustraction de la composante continue ;
- affichage de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ sur un écran d'oscilloscope.

c) Expérience test.

Après la mise en place des circuits supplémentaires nécessaires au traitement électronique que nous venons de décrire, nous avons pu tester le sigmamètre en tant que mesureur absolu de nombres d'ondes issus du laser fonctionnant en impulsions.

Toutefois, lors de ce test, la mise au point des sources de référence secondaires nécessaires à la calibration des différences de marche du sigmamètre n'était pas complètement achevée. Nous avons donc réalisé une simple expérience comparative entre les signaux (issus du sigmamètre) fournis par deux lasers : l'un continu, l'autre fonctionnant en impulsions, leur fréquence étant calée sur une même transition optique. La comparaison entre les deux phases $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ fournies par chacun des lasers et mesurée indépendamment sur l'écran d'oscilloscope constitue le test dont il est question.

Pour le premier de ces lasers, il s'agit du modèle commercial 599/21 de Coherent déjà décrit au paragraphe (5). Le second laser a, par contre, été conçu au laboratoire et porte le nom de "compulsé" [34] : il s'agit

d'un laser monomode accordable, dont la largeur spectrale est de l'ordre de 30 MHz et dont les impulsions peuvent atteindre, après amplification, plusieurs kilowatts crête.

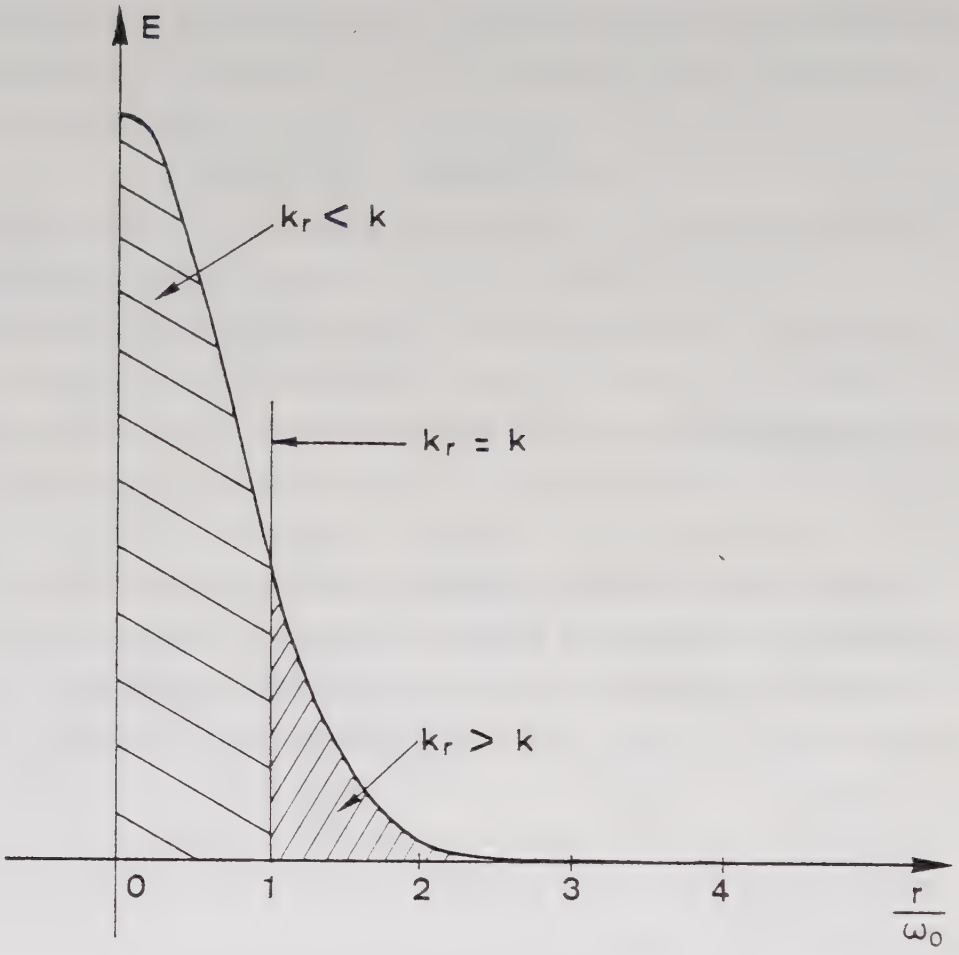
Les mesures sont faites à basse résolution à l'aide des deux premiers interféromètres du sigmamètre ($\delta_1 = 0,1$ cm et $\delta_2 = 1$ cm). Les fréquences mesurées successivement correspondent, pour chacun des lasers, à une transition hyperfine des raies D_1 ou D_2 du sodium. La différence des mesures entre les deux phases ainsi mesurées est inférieure à 1 centième de tour pour chaque transition étudiée ; ceci correspond pour la deuxième différence de marche, à une précision de l'ordre de 10^{-6} . Toutefois cette précision peut largement être augmentée en utilisant les deux plus grandes différences de marche du sigmamètre ; elle n'est en fait limitée que par la durée de l'impulsion du laser, comme nous l'avons mentionné plus haut.

V - SOURCES D'ERREURS.

1 - INTRODUCTION.

Nous allons, dans ce chapitre, analyser les différentes sources d'erreurs qui auront pour effet de donner une mesure de la phase φ différente de la phase théorique obtenue par un appareil idéal parfaitement réglé et éclairé par une onde plane. Il s'en suivra une erreur à la fois sur la mesure des différences de marche qui seront, de ce fait, plus difficiles à déterminer ; par exemple le fait que l'interféromètre soit éclairé par une onde gaussienne provenant de la source laser, donc non parfaitement plane, peut introduire une erreur relativement importante à la précision recherchée des mesures. Nous en étudierons les effets dans le paragraphe suivant. Puis nous décrirons les erreurs entraînées par un désalignement du faisceau laser, ceux dus à un déréglage de l'interféromètre et, enfin, les erreurs effectuées sur la lecture proprement dite de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ qui, contrairement aux autres sources d'erreurs décrites, sont plus spécifiques à notre appareil.

(a)


E
$k_r < k$
$k_r = k$
$k_r > k$
0
1
2
3
4
$\frac{r}{\omega_0}$

(b)

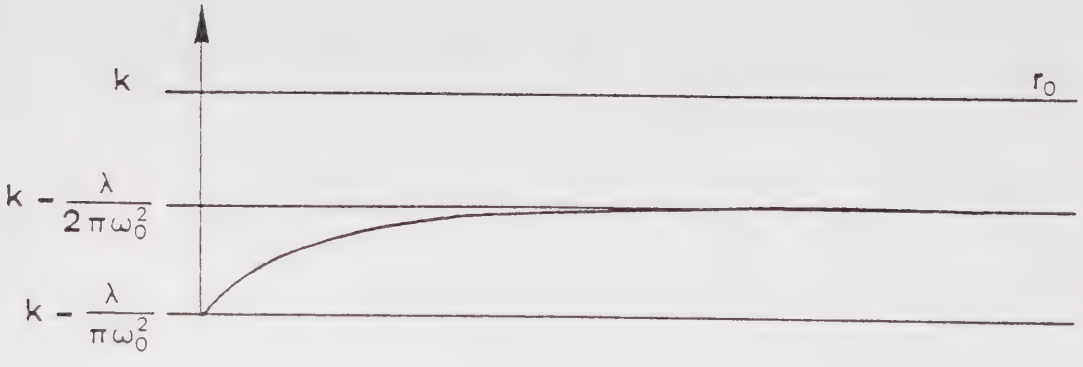

k
r_0
$k - \frac{\lambda}{2\pi\omega_0^2}$
$k - \frac{\lambda}{\pi\omega_0^2}$

Figure 11

2 - FAISCEAUX GAUSSIENS.

L'amplitude du champ électrique d'un faisceau gaussien en fonction de la distance Z le long du trajet optique et la distance r sur un axe perpendiculaire à l'axe du faisceau est donnée par la relation :

$$E(r,Z) = \frac{\omega_0}{\omega_{(Z)}} e^{\left(\frac{-r^2}{\omega^2_{(Z)}}\right)} e^{-i(kZ - \operatorname{arctg} \frac{Z}{Z_0})} e^{-i \frac{kr^2}{2R_{(Z)}}} \qquad [35] \qquad (13)$$

$2\omega_0$ est la taille du faisceau après traversée d'un système optique ("waist") $(Z=0)$;

$2\omega_Z$ son diamètre à une distance Z ;

k le vecteur d'onde réel de la radiation laser ;

Z_0 est la distance pour laquelle le rayon du faisceau gaussien est minimum : on a $Z_0 = \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda}$;

et R_Z est le rayon de courbure du faisceau à la distance Z : on a

$$R_Z = - \frac{1}{Z} [Z^2 + Z_0^2] \quad . \qquad (14)$$

Le premier terme en $e^{\left(\frac{-r^2}{\omega^2_{(Z)}}\right)}$ est un terme d'amplitude ; il n'affecte donc pas la phase de l'onde qui traverse l'interféromètre mais seulement le contraste des franges détectées à la sortie. Le terme en $e^{-i \operatorname{arctg} \frac{Z}{Z_0}}$ représente le changement de phase (égal à π) de l'onde après passage d'un foyer et le terme en $e^{-\frac{ikr^2}{2R_{(Z)}}}$ tient compte de la sphéricité de l'onde à la distance Z.

Nous avons vu que le sigmamètre possède une optique d'entrée qui comprend un système afocal permettant de réduire la divergence $\theta = \frac{\lambda}{\pi \omega_0}$ des faisceaux issus des lasers. Avec le système, ω_0 est typiquement de l'ordre de 1,5 mm et la distance Z_0 (égale à 12 m) est grande devant

la plus grande différence de marche du sigmamètre (1 m). On peut donc raisonnablement admettre que, dans une structure de faisceau quasi-parallèle, la distance "d" de la taille du faisceau à l'interféromètre (ou, plus exactement, au diaphragme placé devant le détecteur) est supérieure à Z_0 . Dans ces conditions, la relation (13) peut s'écrire sous la forme :

$$E(r,Z) = e^{\frac{-r^2}{\omega_0^2}} \cdot e^{-ik(r)Z} \qquad (15)$$

où $$k(r) = k - \frac{1}{Z_0} + \frac{r^2}{\omega_0^2 Z_0} \qquad (16)$$

est le vecteur d'onde mesuré à une distance r du centre du mode supposé TEM_{00} du faisceau gaussien. Ce vecteur d'onde $k(r)$ diffère donc du vecteur d'onde réel de la radiation laser (Fig. 14a).

A la sortie de l'interféromètre de Michelson, l'intensité à la distance r de l'axe Z s'écrit :

$$I(r,\delta) = |E(r,Z_1) + E(r,Z_2)|^2$$

avec $\delta = Z_2 - Z_1$.

Le flux détecté derrière un diaphragme centré de rayon r_0 est proportionnel à :

$$I(r_0,\delta) \propto \int_0^{r_0} I(r,\delta)\, 2\pi r dr \quad .$$

En développant l'intégrale il vient :

$$I(r_0,\delta) \propto I_0[1 + (1-\varepsilon) \cos k(r_0)\, \delta] \qquad (17)$$

avec $\varepsilon = \frac{\lambda^2 \delta^2}{8\pi^2 \omega_0^2}$ très petit devant 1

et (en posant $u_0 = \frac{2r_0^2}{\omega_0^2}$) $k(r_0) = k - \frac{\lambda}{2\pi\, \omega_0^2} \left[1 + \frac{u_0}{e^{u_0} - 1}\right]$

d'où :

$$\boxed{\Delta k = \frac{\lambda}{2\pi\,\omega_0^2}\left[1 + \frac{u_0}{e^{u_0} - 1}\right]} \qquad (18)$$

Cette erreur systématique est maximale pour $r_0 \ll \omega_0$ $\left(\Delta k = \frac{-\lambda}{\pi\,\omega_0^2}\right)$ et minimale pour $r_0 \gg \omega_0$ $\left(\Delta k = \frac{-\lambda}{2\pi\,\omega_0^2}\right)$ ce qui est pratiquement réalisé pour $r_0 \gtrsim 1{,}5\ \omega_0$ (voir Fig. 14b).

Dans le cas où $r_0 \gg \omega_0$, l'erreur trouvée précédemment peut aisément être généralisée au cas $\frac{d}{Z_0}$ quelconque ; elle est indépendante de d et égale à $-\frac{1}{2Z_0}$; il n'en est pas de même pour $r_0 \ll \omega_0$: dans ce cas l'erreur de phase se réduit à $\operatorname{arctg}\frac{Z_1}{Z_0} - \operatorname{arctg}\frac{Z_2}{Z_0} = \operatorname{arctg}\frac{Z_0\,\delta}{Z_0^2 + Z_1 Z_2}$.
On s'aperçoit alors que si $Z_1 Z_2 \approx d^2 \gg Z_0^2$ l'erreur de phase devient négligeable.

Pour $r_0 > \omega_0$, l'erreur relative sur les nombres d'ondes est égale à :

$$\frac{\Delta k}{k} = \frac{-\lambda^2}{4\pi^2\omega_0^2} = \frac{\Delta\sigma}{\sigma} \quad . \qquad (19)$$

Pour $\lambda = 0{,}6\ \mu$ et $\omega_0 = 1{,}5$ mm, on a :

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} \simeq 4.10^{-9} \quad .$$

Cette erreur systématique est donc de l'ordre de grandeur de l'incertitude des mesures effectuées à l'aide de notre appareil (voir Tableau 4). A priori, il semble donc que si les mesures étaient corrigées de ces erreurs systématiques cela permettrait d'augmenter la précision effectivement atteinte par le sigmamètre. Cependant, dans le cas où les longueurs d'ondes de référence utilisées pour la calibration des différences de marche et les longueurs d'ondes que l'on mesure sont relativement proches, cette correction, qui varie très peu avec λ , n'est pas nécessaire et l'erreur commise est compensée simplement par un décalage des différences de marche calculées. Cette compensation naturelle n'est plus

valable dès que les longueurs d'ondes que l'on mesure couvrent un large domaine spectral (le visible) ; il est alors préférable d'appliquer une correction systématique dont l'ordre de grandeur est facilement calculable par (18) dans la mesure où l'incertitude des mesures reste de l'ordre de quelques 10^{-10}, précision qui ne nécessite pas une connaissance parfaite de r_0 et du paramètre ω_0 le plus difficilement mesurable avec précision.

3 - DESALIGNEMENT DU FAISCEAU LASER.

L'amplitude de l'erreur introduite par une inclinaison du faisceau laser par rapport à la normale des miroirs de l'interféromètre peut être plus importante que celle décrite précédemment ; cette erreur entraîne une variation $\Delta\delta$ de la différence de marche (et, par conséquent, une erreur $\Delta\sigma$ dans la mesure du nombre d'ondes) telle que :

$$\frac{\Delta\delta}{\delta} = -\frac{\alpha^2}{2} = \frac{\Delta\sigma}{\delta}$$

où α représente l'angle d'inclinaison.

Pour atteindre la précision $\frac{\Delta\sigma}{\sigma} < 10^{-9}$, α doit être inférieur à $\approx 5.10^{-5}$ rad (ou environ 10").

Nous avons vu au Chapitre III que le sigmamètre possède une optique d'entrée permettant de définir de manière précise le trajet optique commun à tous les faisceaux qui traversent l'appareil. Toutefois l'utilisation d'un expanseur de faisceau travaillant comme une lunette auto-collimatrice ne permet pas d'atteindre une telle précision (exigée en fait essentiellement pour la plus grande différence de marche qui est la plus sensible à tout type de réglage). Cet ajustement est complété par une méthode de réglage fin que nous allons décrire brièvement. On peut remarquer que la variation de la différence de marche, pendant le réglage

de l'angle d'inclinaison du faisceau laser, s'accompagne d'une rotation du spot sur l'écran de l'oscilloscope qui sert d'affichage de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$. C'est cette rotation que l'on va utiliser pour ajuster l'angle d'inclinaison du faisceau avec la précision désirée. En position correcte, perpendiculaire au miroir de l'interféromètre ($\alpha = 0$) , la phase φ déterminée à partir des deux signaux $\varphi_{\parallel}$ et $\varphi_{\perp}$ détectée à la sortie de l'interféromètre est extrêmale. La procédure de réglage est alors simple : on ajuste l'angle en observant simultanément la rotation du spot jusqu'à ce que la position extrême soit atteinte ; le réglage optimum est ainsi obtenu à la précision désirée. Sur le Tableau (6) nous avons porté plusieurs mesures des excédents fractionnaires obtenus (à différentes périodes) par deux lasers centrés sur la même longueur d'onde. Le premier d'entre eux est le laser He-Ne de référence à $\lambda = 611{,}8$ nm dont la fréquence est calée sur la composante hyperfine "i" de la raie 47R(9-2) de la molécule d'iode ; le second est le laser à colorant continu monomode et accordable dont la fréquence

$$\sigma_1 = 16340{,}65805 \text{ cm}^{-1}$$

	d.d.m. 1	d.d.m. 2	d.d.m. 3	d.d.m. 4
Laser à colorant	0,53	0,775	0,87	0,07
Laser He-Ne	0,53	0,77	0,88	0,08

Laser à colorant	0,005	0,985	0,97	0,46
Laser He-Ne	0,010	0,98	0,98	0,45

Mesures comparatives de la fréquence de deux lasers calés sur la même raie.

Tableau 6

est asservie sur la même raie à l'aide d'un montage d'absorption saturée en cellule extérieure (voir Annexe III). Les valeurs mesurées sont effectivement identiques à un centième de tour près environ. D'autre part, les paramètres ω_0 de ces deux lasers étant différents, nous voyons qu'à cette précision (quelque 10^{-9}) l'erreur systématique introduite par cette différence n'apparaît pas et peut donc être négligée.

4 - DEREGLAGE DE L'INTERFEROMETRE.

Une erreur similaire à celle décrite ci-dessus peut être introduite par un déréglage des miroirs M_n des interféromètres. Après avoir réglé chaque interféromètre, en utilisant par exemple un oscilloscope permettant de visualiser les franges d'interférence, la précision sur le réglage du parallélisme entre chaque miroir M_n et l'image M'_0 du miroir M_0 à travers la séparatrice est telle que le contraste des franges est certainement à quelques pour cent près de la valeur optimale. En tout état de cause un léger défaut de parallélisme n'introduire aucune erreur si celui-ci est constant pendant toute la durée des mesures (y compris celles concernant la calibration des différences de marche) et si tous les faisceaux laser qui traversent le sigmamètre sont exactement colinéaires. (Rappelons qu'un tel défaut n'affecte pas la différence de phase entre les deux composantes du faisceau laser polarisées perpendiculairement et analysées séparément à la sortie de l'interféromètre de Michelson).

Calculons l'ordre de grandeur de l'erreur commise dans le cas où les faisceaux laser ne suivent pas rigoureusement le même trajet optique dans un interféromètre déréglé. La Figure (15) illustre cette situation où α représente l'angle d'inclinaison entre les deux miroirs M_n et M_0 et où $(x_2 - x_1)$ représente le diamètre du faisceau laser détecté à

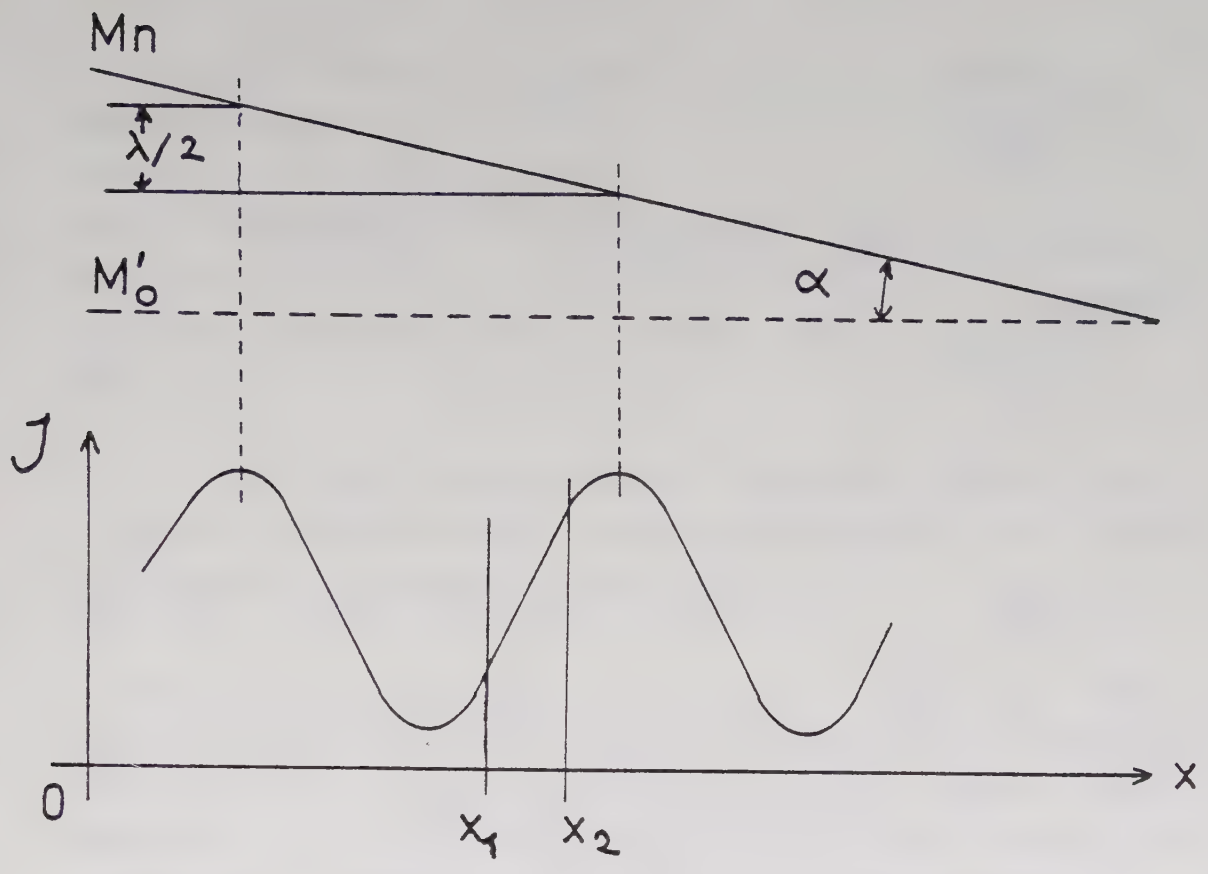


Figure 15

la sortie de l'interféromètre. Celui-ci forme maintenant un système de frange de coin d'air dont la périodicité des franges est égale à $\frac{4\pi\alpha x}{\lambda}$.

L'intensité détectée à la sortie de l'interféromètre est égale à :

$$I = \int_{x_1}^{x_2} I_0 \left(1 + \cos \frac{4\pi\alpha x}{\lambda}\right) dx \qquad (20)$$

soit :

$$I = I_0 \left[(x_2 - x_1) + \frac{\sin \frac{2\pi\alpha}{\lambda}(x_2 - x_1)}{\frac{2\pi\alpha}{\lambda}} \cos \frac{2\pi\alpha}{\lambda}(x_2 - x_1)\right] \qquad (21)$$

Le contraste des franges est égal a $c = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}}$,

soit, en posant $(x_2 - x_1) = \varepsilon$:

$$c = \frac{\sin \frac{2\pi\alpha\varepsilon}{\lambda}}{\frac{2\pi\alpha\varepsilon}{\lambda}} \quad . \tag{22}$$

En développant $\sin \frac{2\pi\alpha\varepsilon}{\lambda}$ nous avons : $c \simeq 1 + \frac{1}{6}\left(\frac{2\pi\alpha\varepsilon}{\lambda}\right)^2$ (23)

qui entraîne :

$$\alpha = \frac{\lambda\sqrt{(1-c)6}}{2\pi\varepsilon} \quad . \tag{24}$$

Si le faisceau laser subit un petit déplacement égal à "a" , en utilisant (21) le déphasage à la sortie de l'interféromètre est égal à

$$\Delta\varphi = \frac{4\pi a\alpha}{\lambda} \quad . \tag{25}$$

Une erreur $\Delta\varphi < \frac{2\pi}{100}$ est obtenue si $a < \frac{\lambda}{200\,\alpha}$ en portant (24) dans (25) il vient :

$$\boxed{a < \frac{\pi}{100\sqrt{(1-c)6}} \cdot \varepsilon} \tag{26}$$

où a représente donc la tranlation du faisceau laser,

ε son diamètre,

et c le contraste des franges,

avec $c \simeq 0{,}95$ (*)

et $\varepsilon \simeq 8$ mm

l'erreur sera inférieure à $\frac{1}{100}$ ème de tour si la translation du faisceau laser ne dépasse pas 0,16 mm.

(*) En réalité, l'optique d'un interféromètre étant rarement parfaite, le contraste des franges ne peut être égal à 1 et la valeur de c , calculée par (22), représente en fait la valeur du contraste des franges par rapport à la valeur optimale elle-même inférieure à 1.

L'optique d'entrée du sigmamètre possède plusieurs diaphragmes pour l'alignement des faisceaux ; aussi cette erreur est, en fait, transformée en une erreur angulaire. Nous avons vu, au paragraphe précédent, comment minimiser cette source d'erreur avec précision. La superposition des faisceaux laser peur donc être obtenue avec une bien meilleure précision que l'exemple numérique cité.

5 - ERREUR SUR LA LECTURE DE LA PHASE $\varphi = 2\pi\sigma\delta$.

Jusqu'à présent, les sources d'erreurs que nous avons décrites étaient communes à tous les types d'instruments de mesure de longueur d'onde basés sur l'utilisation d'interféromètres de Michelson. Celle que nous allons décrire maintenant est plus spécifique à notre instrument et concerne la lecture proprement dite de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$, affichée sur l'écran d'un oscilloscope de contrôle (que celle-ci soit mesurée directement sur cet écran par une lecture visuelle ou bien calculée à l'aide d'un miniordinateur).

Au paragraphe 1 du Chapitre III, nous avons vu que l'origine de la phase φ_0 ainsi que la différence de phase $\Psi = \frac{\pi}{2} = 2(\Psi_{\parallel} - \Psi_{\perp})$ sont presque constantes dans tout l'intervalle spectral correspondant au visible et au proche infrarouge et que leurs faibles variations n'entraînent pas une limitation sérieuse de la précision des mesures. Nous devrons, cependant, conserver présent à l'esprit ce type d'erreurs systématiques qui imposeront d'effectuer des corrections si des mesures étaient éventuellement entreprises en dehors de l'intervalle spectral considéré.

Dans le cas idéal, les variations crête-crête en fonction de σ des deux signaux $\cos\varphi$ et $\sin\varphi$, affichés sur l'écran d'oscilloscope,

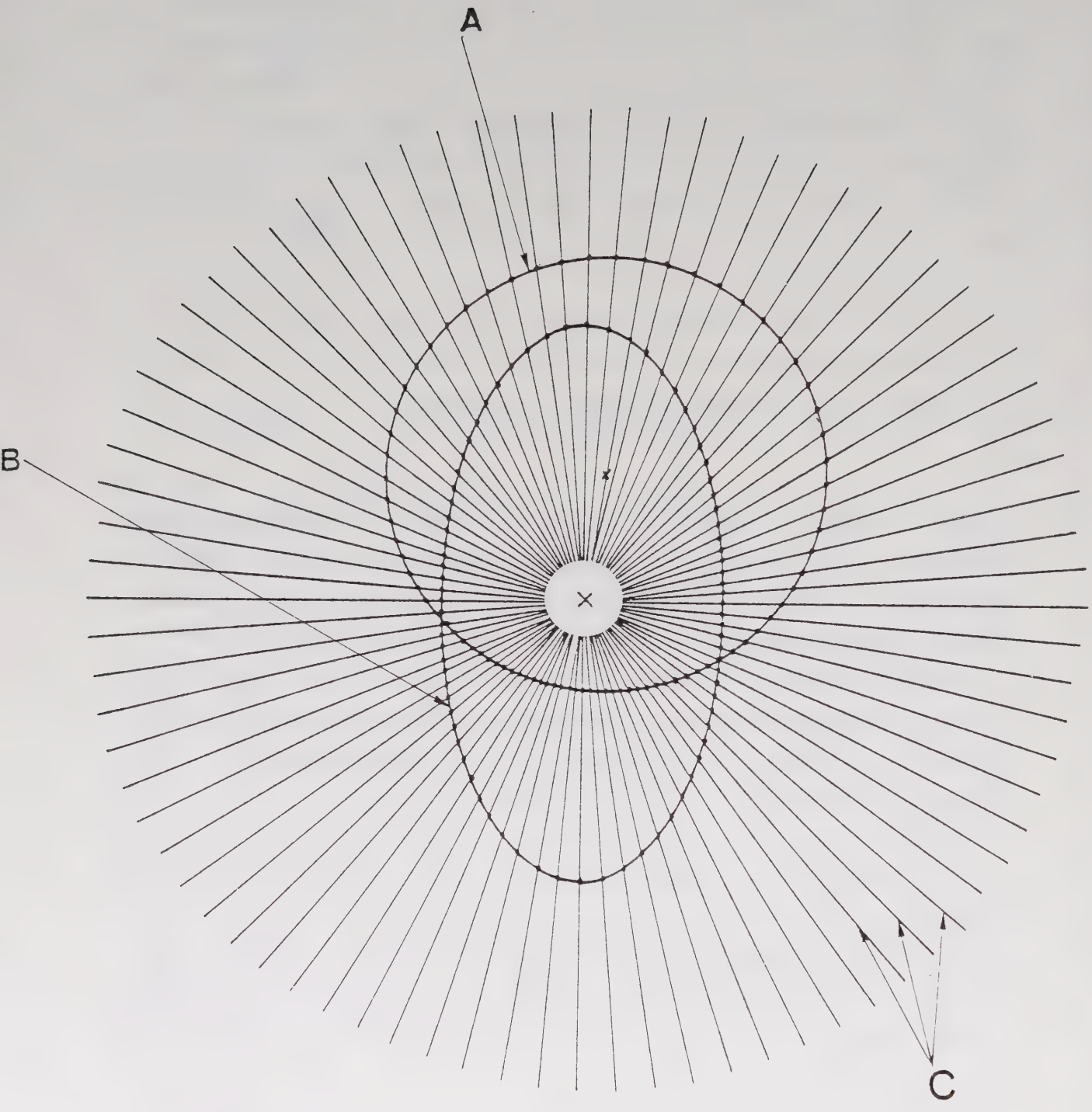


Figure 14 : Non linéarité du balayage :

A dans le cas d'un décentrage,

B dans le cas d'une ellipticité,

C partage électronique linéaire.

ont exactement la même amplitude et leur composante continue est complètement supprimée ; la rotation du spot, sur cet écran, s'effectue alors sur un cercle parfaitement centré si σ varie : le nombre d'ondes σ est alors rigoureusement proportionnel à φ . Toute déviation à ces conditions parfaites entraîne une non-linéarité de σ en fonction de φ (voir Fig. 16). Sans reprendre les calculs déjà explicités [12], l'erreur entraînée par cette non-linéarité sera inférieure à 1/100ème de tour si les deux amplitudes crête-crête des signaux $\cos\varphi$ et $\sin\varphi$ ne diffèrent pas de plus de 6% et si le centre du cercle est défini à mieux que 3% de son diamètre ; ces précisions ne sont pas très sévères et peuvent être obtenues de manière courante.

6 - CONCLUSION.

Pour conclure ce chapitre consacré aux erreurs, la précision sur les mesures absolues de nombres d'ondes que nous pensions atteindre ($\frac{\Delta\sigma}{\sigma}$ de l'ordre de 10^{-8}) est confirmée par les multiples exemples décrits dans le Chapitre IV puisque l'erreur standard sur la valeur moyenne de plusieurs mesures est souvent inférieure à 5.10^{-9} ($\simeq 2{,}5$ MHz) et que l'incertitude d'une mesure unique correspond à une précision de l'ordre de 10^{-8} .

VI - APPLICATIONS.

A - INTRODUCTION.

Dans ce chapitre, nous décrivons une application importante du sigmamètre qui concerne le pilotage de la fréquence de lasers accordables. Celle-ci ayant fait l'objet d'une description détaillée dans ma thèse de troisième cycle, nous en rappelons simplement le principe, puis nous décrivons l'appareil utilisé dans les expériences réalisées au C.E.R.N. sur les isotopes radioactifs d'alcalins (certaines d'entre elles font l'objet de la deuxième partie de ce mémoire). Nous décrivons ensuite une autre expérience de spectroscopie, semblable à celle destinée à la mesure de certaines raies du néon (Chapitre III), mais qui concerne, cette fois, la mesure absolue de la transition $2p\ ^3P - 3d\ ^3D$ à $\lambda = 587{,}6$ nm de l'Hélium 4 .

B - ASSERVISSEMENT ET PILOTAGE DE LA FREQUENCE DES LASERS ACCORDABLES ; MESURES RELATIVES DE FREQUENCES.

1 - Position du problème.

Comme nous l'avons mentionné dans l'introduction générale, parmi les problèmes spécifiques des lasers accordables figure, entre autre,

celui du contrôle ou de l'asservissement de sa fréquence ainsi que la calibration précise de celle-ci au cours de son balayage. Sans faire un inventaire complet des diverses méthodes susceptibles de résoudre ces deux problèmes importants, rencontrés lors de l'utilisation des lasers accordables à des expériences de spectroscopie, rappelons celles les plus couramment employées :

- Une première méthode, permettant de balayer la fréquence de ces lasers dans un domaine spectral relativement grand (soit, typiquement, de plusieurs dizaines de GHz), consiste à asservir la fréquence du laser sur une cavité interférométrique passive aussi stable que possible ; toute variation linéaire contrôlée de la longueur de cette cavité doit alors entraîner un balayage équivalent de la fréquence du laser. Cependant, la linéarité du balayage dépend de plusieurs paramètres le plus souvent difficiles à contrôler.:

. linéarité de la rampe modifiant la longueur de la cavité,

. variations de la température,

. variations de la pression,

. stabilité des circuits électroniques, etc...

- D'autres méthodes, déjà mentionnées dans l'introduction générale, sont basées sur des techniques de battements de fréquences entre deux lasers (ou à l'aide d'un seul laser dont on module l'amplitude du mode à haute fréquence afin d'utiliser l'une des bandes latérales comme seconde source). Elles sont de loin les plus précises. Cependant le domaine de balayage de ces méthodes reste relativement restreint (quelques GHz de mieux).

Le sigmamètre ne comporte aucune pièce mobile, il est donc possible de l'utiliser comme cavité passive pour l'asservissement des lasers accordables. Mais, contrairement aux méthodes de balayage couramment utilisées, nous verrons que le sigmamètre permet d'effectuer ce balayage sans modification de la longueur de la cavité (la différence de marche δ de l'interféromètre reste fixe) et que la calibration de ce balayage se fait sans difficulté grâce à la connaissance de δ . Au cours de

cette description nous ferons largement appel à divers problèmes particuliers qui se sont posés lors des expériences effectuées au C.E.R.N. sur des isotopes radioactifs.

2 - Principe.

a) Obtention d'un signal d'erreur.

Le principe est schématisé par le bloc-diagramme de la Fig. (17). Après division par un signal proportionnel à I_0 et soustraction de la composante continue (partie encadrée), les deux signaux $\cos\varphi$ et $\sin\varphi$ $(\varphi = 2\pi\sigma\delta)$ sont envoyés d'une part aux entrées X et Y d'un oscilloscope de contrôle et, d'autre part, aux premières entrées (respectivement a_1 er a_2) de deux circuits multiplieurs identiques. Deux autres signaux électroniques égaux à $\cos(\omega t + \varphi_0)$ et $\sin(\omega t + \varphi_0)$ dont nous verrons la génération plus loin, sont envoyés sur les deux autres entrées respectivement b_1 et b_2 ; la pulsation ω correspond à une fréquence stable de 50 kHz et φ_0 une phase électronique variable digitalement suivant une méthode décrite plus loin. En additionnant entre eux les signaux sortant de chaque multiplieur nous obtenons :

$$\cos\varphi \cdot \cos(\omega t + \varphi_0) + \sin\varphi \cdot \sin(\omega t + \varphi_0) = \cos[\omega t + (\varphi_0 - \varphi)] \quad .$$

Après une mise en forme (rectangulaire) de ce signal périodique (par exemple à l'aide d'un amplificateur saturable), sa phase est comparée à celle d'un signal de référence $\mathrm{rect}[\omega t + \varphi'_0]$ obtenu électroniquement. Nous obtenons, en sortie de ce détecteur de phase et après filtrage, un signal continu qui est une fonction linéaire de $[(\varphi_0 - \varphi'_0) - \varphi]$, voir Fig. (18). Ce signal, centré sur la valeur zéro, est directement utilisé comme signal d'erreur ε dans la boucle d'asservissement du laser. Lorsque la boucle est fermée ε s'annule de telle façon que $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ est égale à $(\varphi_0 - \varphi'_0)$:

$$\varepsilon = (\varphi_0 - \varphi'_0) - \varphi = 0 \rightarrow \varphi = (\varphi_0 - \varphi'_0) \quad .$$

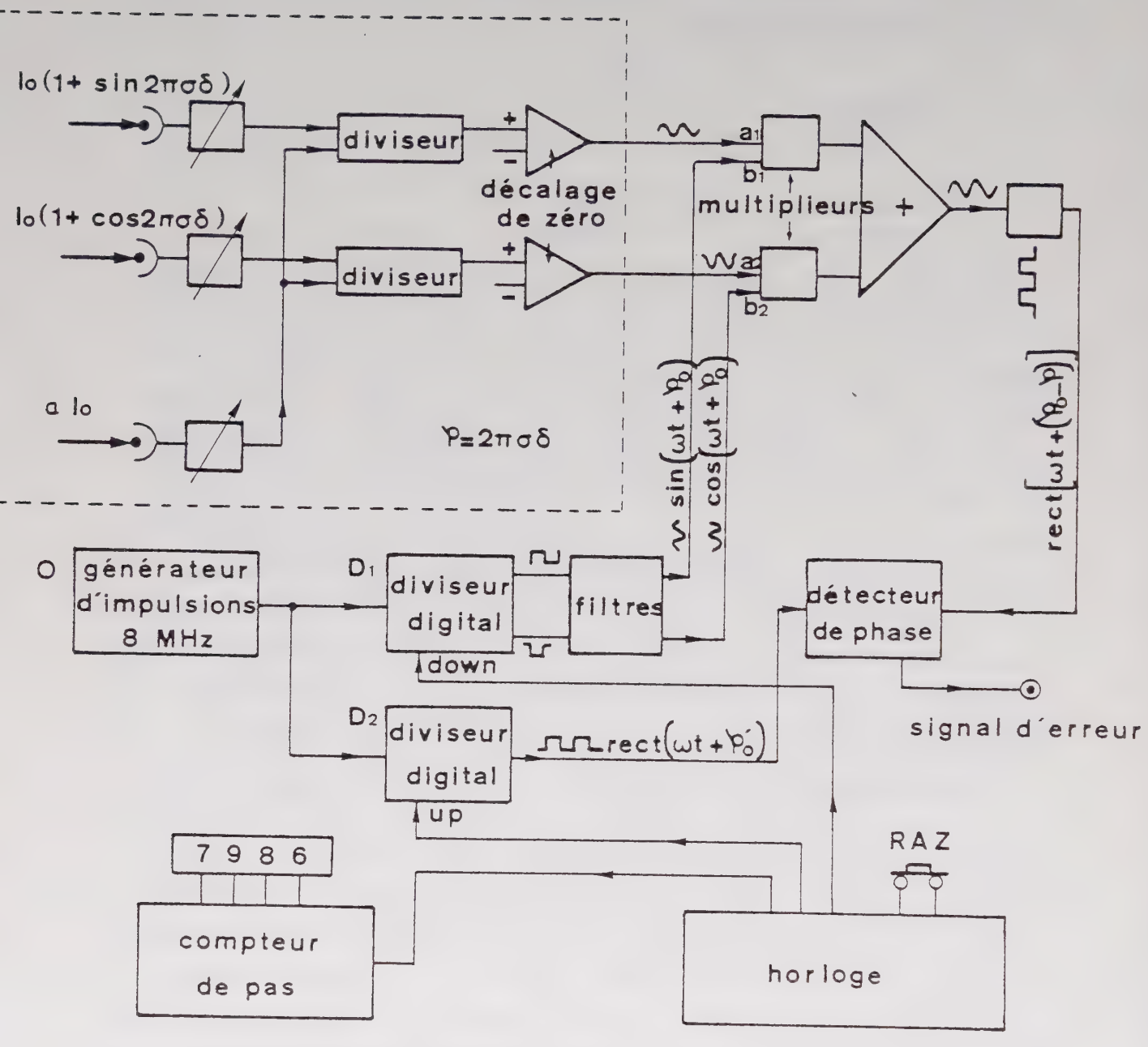


Figure 17

Electronique d'asservissement et de balayage.

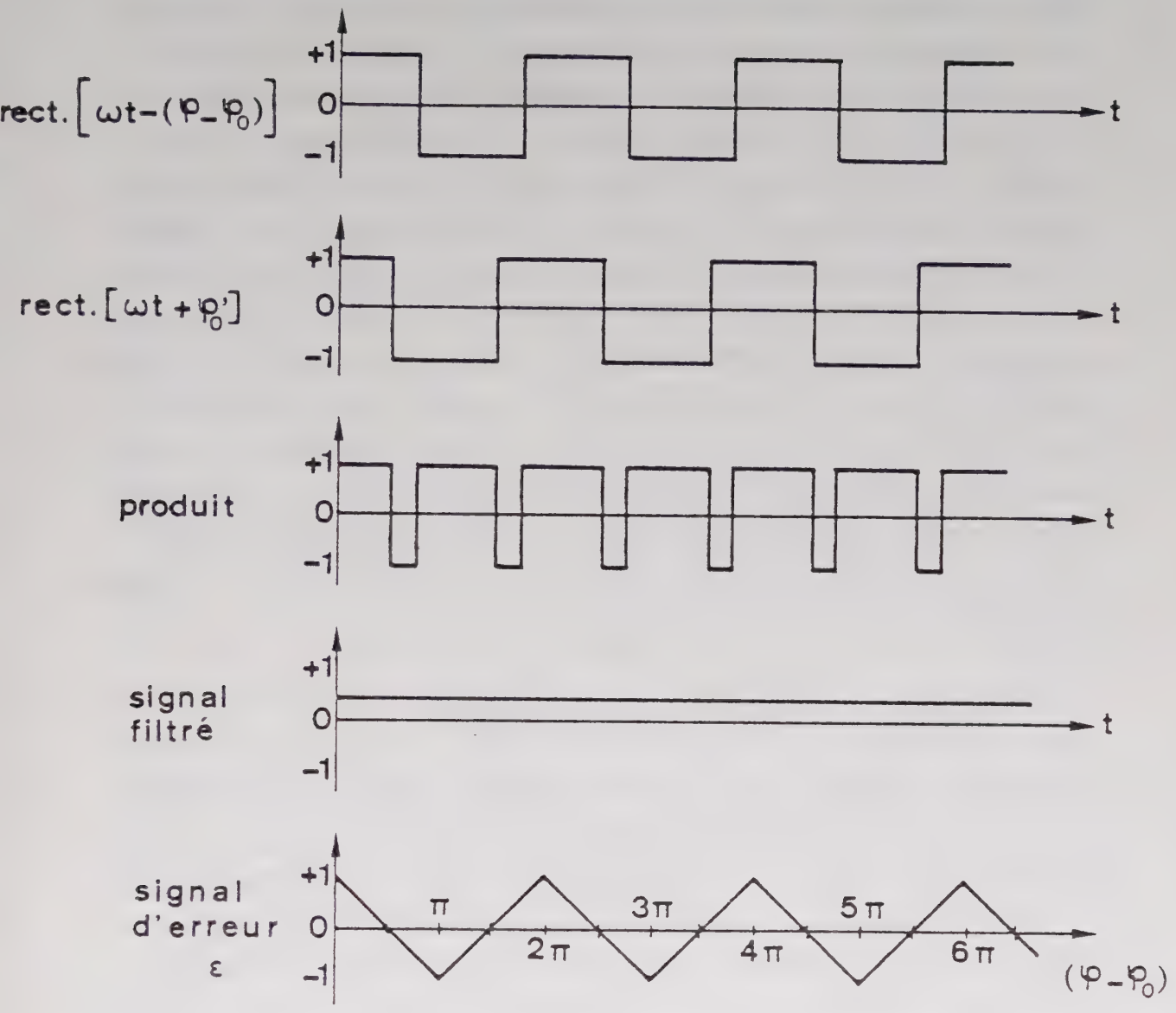


Figure 18

Signal d'erreur obtenu à partir de la détection de phase.

Notons que, suivant cette méthode, la rapidité de l'asservissement n'est pas limitée par ce traitement électronique ; en effet ω correspond à une modulation purement électronique et ne fait pas intervenir de pièce mécanique en mouvement. Cette modulation peut être aussi rapide qu'on le désire, d'où un temps de réponse de l'asservissement d'autant plus bref. Dans notre cas, la bande passante de l'asservissement est de quelques dizaines de kHz, ce qui permet de couvrir assez bien le spectre de puissance des fluctuations. Ajoutons que dans le cas d'asservissement de laser monomode accordable (dont l'amplitude des fluctuations ne dépasse pas quelques dizaines de MHz, même pour les lasers à colorant), nous avons intérêt à utiliser un interféromètre très sensible à des variations de fréquence, c'est-à-dire un interféromètre de grande différence de marche. L'appareil que nous avons construit, pour les expériences de spectroscopie effectuées au C.E.R.N., a deux mètres de différence de marche ; chaque tour de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ correspond donc à une variation $\Delta\sigma$ du nombre d'ondes égale à $1/\delta$ soit 5 mk (environ 150 MHz).

b) Balayage du nombre d'ondes issu des lasers.

En boucle fermée $\varphi = (\varphi_0 - \varphi'_0)$; tout balayage de la phase électronique φ_0 entraînera donc un balayage équivalent de la phase φ, c'est-à-dire du nombre d'ondes σ de la radiation laser ; le balayage s'effectue en sens inverse pour une variation analogue de φ'_0. Nous avons choisi d'effectuer ce balayage de manière digitale. Les trois signaux $\cos(\omega t + \varphi_0)$, $\sin(\omega t + \varphi_0)$ et $\mathrm{rect}(\omega t + \varphi'_0)$ utilisés lors de ce traitement électronique sont fabriqués de la façon suivante :

Un générateur (Gr) envoie des impulsions de fréquence 8 MHz (*) à l'entrée de deux circuits diviseurs par 160 identiques (D_1 et D_2) par l'intermédiaire de deux portes P_1 et P_2. A la sortie, nous

---

(*) Cette fréquence constitue une limite supérieure pour les circuits électroniques du type TTL de qualité courante.

obtenons deux signaux rectangulaires de même période et de même phase (φ_0) dont la pulsation ω correspond à la fréquence stable $F = \frac{8\ MHz}{160}$ soit 50 KHz . A partir du premier diviseur on fabrique, en fait, les deux signaux en quadrature de phase respectivement égaux à $\cos(\omega t + \varphi_0)$ et $\sin(\omega t + \varphi_0)$ obtenus par un filtrage approprié du signal rectangulaire sortant du diviseur. Le second diviseur, quant à lui, délivre le signal rectangulaire périodique $\text{rect}(\omega t + \varphi_0)$ utilisé lors de la détection de phase. En bloquant par un signal rectangulaire la porte P_1 , il est possible de supprimer une impulsion, et une seule, à l'entrée du diviseur D_1 faisant varier la phase du signal rectangulaire obtenue en sortie de $\frac{2\pi}{160}$, d'où une variation $\Delta\sigma$ de σ égale à $\frac{1}{160\delta}$ soit, pour $\delta = 200$ cm , $3{,}125 \times 10^{-5}$ cm^{-1} (ou $\simeq 0{,}937$ MHz), Fig. (19). Il faudra donc 160 impulsions consécutives pour que le point caractérisant la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ affichée sur l'écran d'oscilloscope fasse exactement un tour complet. On peut noter que d'un tour à l'autre la position des points se superpose exactement. La calibration du balayage ne pose donc aucun problème puisque δ peut être déterminé avec une bonne précision (voir §.3.c) ; il suffit, lors de l'enregistrement d'une structure (au cours du balayage de la fréquence du laser accordable) d'enregistrer simultanément les tops d'avance de la phase φ_0 ou φ'_0 . D'où l'intérêt de faire varier ces phases de manière digitale puisque la linéarité du balayage et la simplicité de la calibration découle directement de cette digitalisation. Ce balayage peut, d'autre part, être facilement contrôlé ou commandé par un mini-ordinateur ce qui constitue un avantage certain auquel les expériences du C.E.R.N. ont largement fait appel : les spectres étant d'une part enregistrés à l'aide d'un analyseur multicanal et, d'autre part, chaque pas étant numéroté, il était très facile de faire correspondre à chaque canal le numéro d'un pas bien déterminé, auquel cas la calibration était immédiate.

En élargissant convenablement les signaux appliqués sur les portes P_1 et P_2 à l'entrée des diviseurs, on peut (suivant la largeur) supprimer 2, 3 ou n impulsions issues du générateur à 8 MHz et décaler ainsi la phase φ_0 ou φ'_0 du signal à la sortie des diviseurs de 2, 3 ou n fois $\frac{2\pi}{160}$ (Fig. (20).

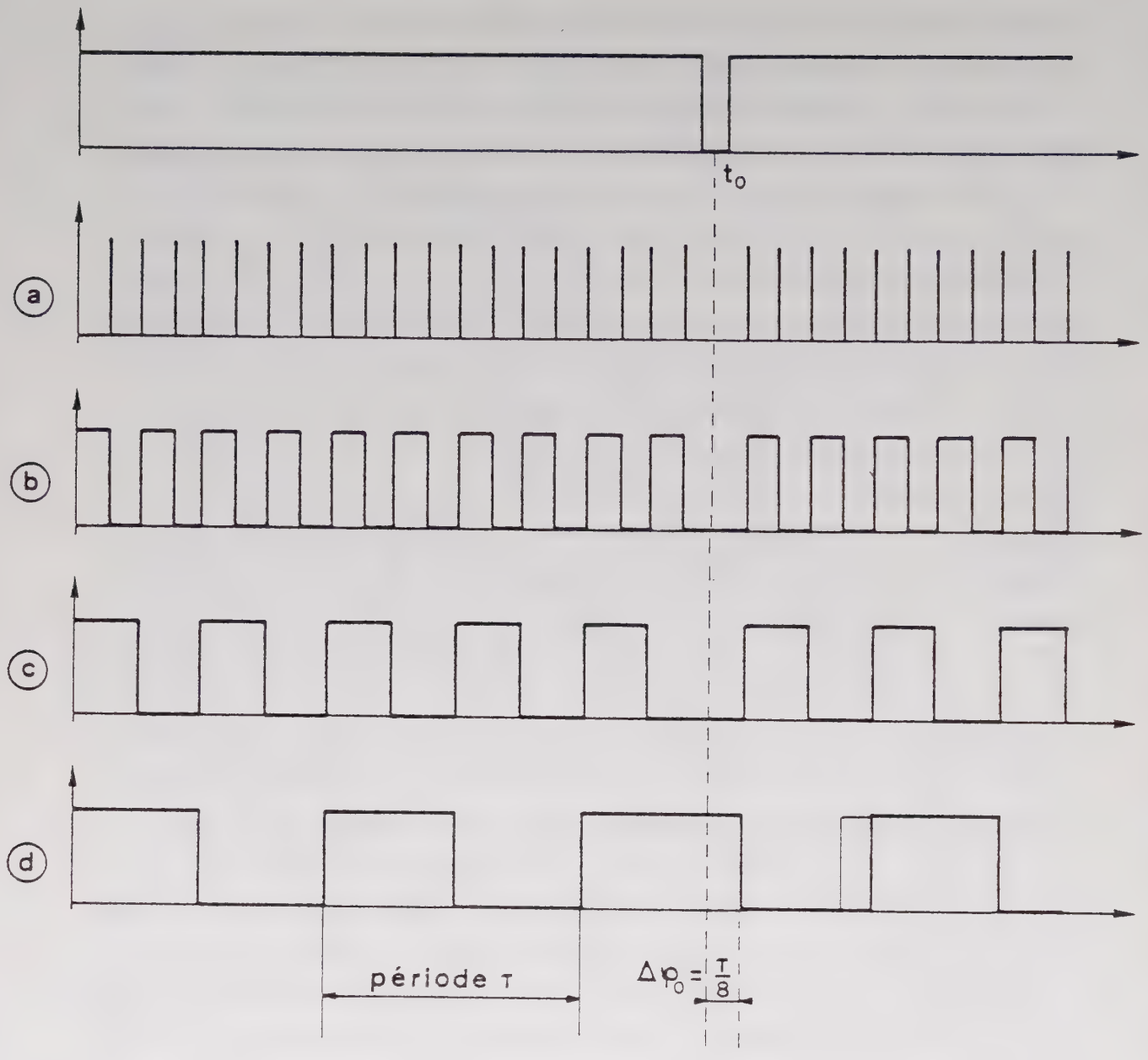


Figure 19

Principe du balayage de la fréquence du laser par décalage de la phase φ_o. Dans cet exemple, la fréquence du générateur d'impulsions (a) est divisée par 8 (d).

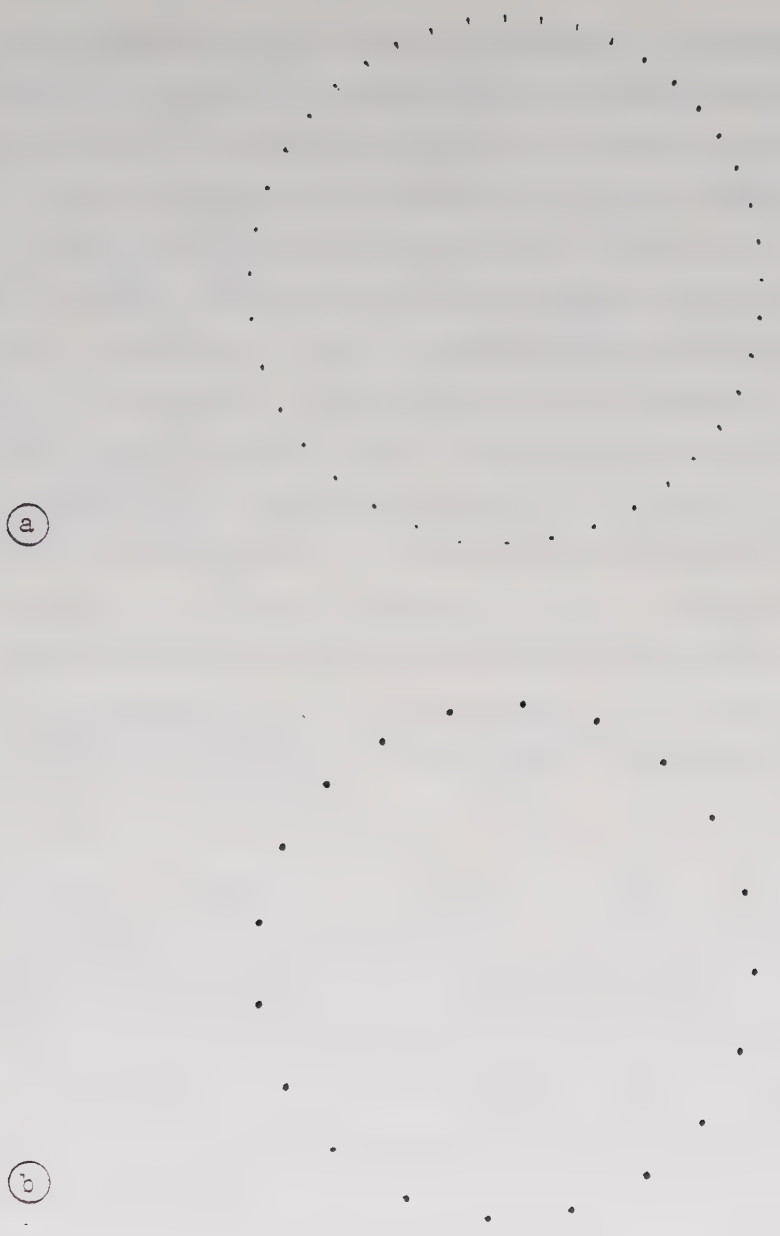


Figure 20

(a) : enregistrement photographique de l'écran d'affichage lors d'un balayage digital de la fréquence du laser (3,75 MHz par pas).

(b) : pas de 7,5 MHz.

Chaque pas élémentaire, permettant l'avance de la fréquence du laser, peut donc prendre diverses valeurs égales à $n \cdot \frac{1}{160\ \delta}$ (soit $n \times 0{,}937$ MHz). On peut noter que l'intervalle spectral maximum balayé par la fréquence du laser n'est pas du tout borné par cette méthode d'asservissement (le nombre de tours balayables n'étant pas limité), mais uniquement par les performances du laser accordable lui-même, soit plusieurs dizaines de GHz pour les lasers à colorant monomodes. L'avance digitale de la fréquence du laser peut être commandée soit par une horloge interne à cadences variables, soit une horloge externe, soit encore manuellement. Ainsi, la différence de marche δ du sigmamètre étant stabilitée à l'aide d'un laser He-Ne de référence (voir §.5 du Chapitre III), la fréquence du laser accordable asservie du sigmamètre peut être balayée rapidement ou très lentement (quelques MHz par heure) sans perte de précision ni sur la linéarité, ni sur la calibration de ce balayage dans la limite des sources d'erreurs définies au paragraphe suivant.

Des balayages aussi lents sont souvent nécessaires si, lors d'une expérience, le signal attendu est faible et nécessite, pour chacun des pas, une intégration de plusieurs minutes. Citons par exemple l'étude spectroscopique de l'isotope très rare de sodium de masse 31 dont la production, extrêmement faible, permettrait de ne détecter qu'un seul atome pour chaque impulsion de 20 GeV du synchrotron à protons déclenché toutes les 2,4 secondes... (voir 2ème Partie : production d'isotopes radioactifs et principe de la détection des transitions optiques).

3 - Précision de la méthode, sources d'erreurs.

a) Introduction.

Au Chapitre V, nous avons décrit les principales sources d'erreur limitant la précision du sigmamètre utilisé en tant que mesureur de nombres d'ondes. Pour un appareil essentiellement destiné à l'asservissement des lasers accordables et aux mesures relatives de nombres d'ondes

(mesures d'écarts faibles entre différentes raies spectrales) les erreurs prépondérantes limitant la précision des mesures sont celles qui sont associées à un décentrage du cercle par rapport au zéro électrique ainsi qu'à son ellipticité ; nous les étudierons en premier. Nous décrirons ensuite la méthode de calibration de la différence de marche de cet appareil ; nous verrons que pour un appareil essentiellement destiné aux mesures relatives, il n'est pas nécessaire de calibrer la différence de marche avec autant de précision que pour un appareil destiné aux mesures absolues. Après avoir donné quelques exemples de mesures relatives, nous terminerons ce paragraphe par l'étude d'une erreur systématique introduite dans le cas où le sigmamètre n'est pas placé sous vide.

b) Erreur sur la lecture de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$.

Comme nous l'avons décrit au paragraphe 5) du Chapitre V, cette erreur dépend d'une part de la précision avec laquelle les amplitudes respectives des deux signaux $\cos\varphi$ et $\sin\varphi$ peuvent être ajustées de manière identique et, d'autre part, de celle avec laquelle la composante continue peut être supprimée. Nous avions montré [12] que dans le premier cas les amplitudes crête-crête peuvent être identiques à mieux de 1% près et, dans le second cas, le zéro électrique peut être facilement ajusté à 2% près de cette amplitude. Compte tenu de cette précision, et pour une différence de marche de 2 m (150 MHz par tour), l'erreur maximum sera de l'ordre de 1/250ème de tour, soit 0,6 MHz. Rappelons que cette erreur est périodique, de période $1/\delta$, et n'est donc pas cumulative d'un tour à l'autre ; en effet la somme des erreurs sur un tour complet s'annule ; l'incertitude sur la mesure d'écart relatif entre composantes proches sera donc la même que celle entre composantes éloignées.

c) Calibration de la différence de marche.

Dans la plupart des expériences effectuées au C.E.R.N. sur les isotopes radioactifs d'alcalins, les plus grands intervalles spectraux

à mesurer ne dépassaient pas, en général, 10 GHz (seul le francium possède une structure hyperfine de l'ordre de 50 GHz). Aussi, contrairement à l'utilisation du sigmamètre en tant que mesureur absolu de nombres d'ondes, qui nécessite une mesure de la plus grande différence de marche avec une précision de l'ordre de 5.10^{-9} (voir §.3, Chap. IV), pour cette application particulière et compte tenu de l'erreur estimée plus haut, il suffit de connaître δ à $\frac{0,6\ \text{MHz}}{10^4\ \text{MHz}} = 6.10^{-5}$ près, soit (pour $\delta = 2\,\text{m}$) 12 centièmes de mm. Une telle précision peut être atteinte facilement sans faire appel à la méthode des excédents fractionnaires, par exemple à l'aide d'instruments de mesures traditionnels comme un simple pied à coulisse.

Une autre méthode de mesure de δ, dont la précision est comparable et que nous avons en fait utilisée, consiste à enregistrer, à l'aide d'un laser accordable asservi sur le sigmamètre, une grande structure hyperfine dont les écarts entre les diverses composantes sont parfaitement connus et ont été mesurés par des méthodes radiofréquence . C'est le cas, par exemple, de la structure hyperfine bien connue du niveau fondamental $(6s\ ^2S_{1/2})$ du Césium 133 dont l'écart entre les sous-niveaux hyperfins correspondant à la transition $|4,0\rangle \longleftrightarrow |3,0\rangle$ est égal à :

$$\Delta\nu = 9192,631770\ \text{MHz} .$$

En enregistrant alors simultanément les tops d'avance de la fréquence du laser, il est facile de déduire de cet écart la valeur d'un pas élémentaire du sigmamètre (ou, ce qui revient au même, celle de la différence de marche). Au cours des expériences C.E.R.N. consacrées à l'étude des isotopes du césium, nous avons pu ainsi calibrer de manière précise la valeur du pas élémentaire correspondant à 1/160ème de tour :

$$\Delta\nu = 0,93590(8)\ \text{MHz} .$$

L'incertitude sur la mesure de la structure hyperfine du niveau fondamental du césium est approximativement égale à 0,8 MHz et la précision relative correspondante de l'ordre de 9.10^{-5}.

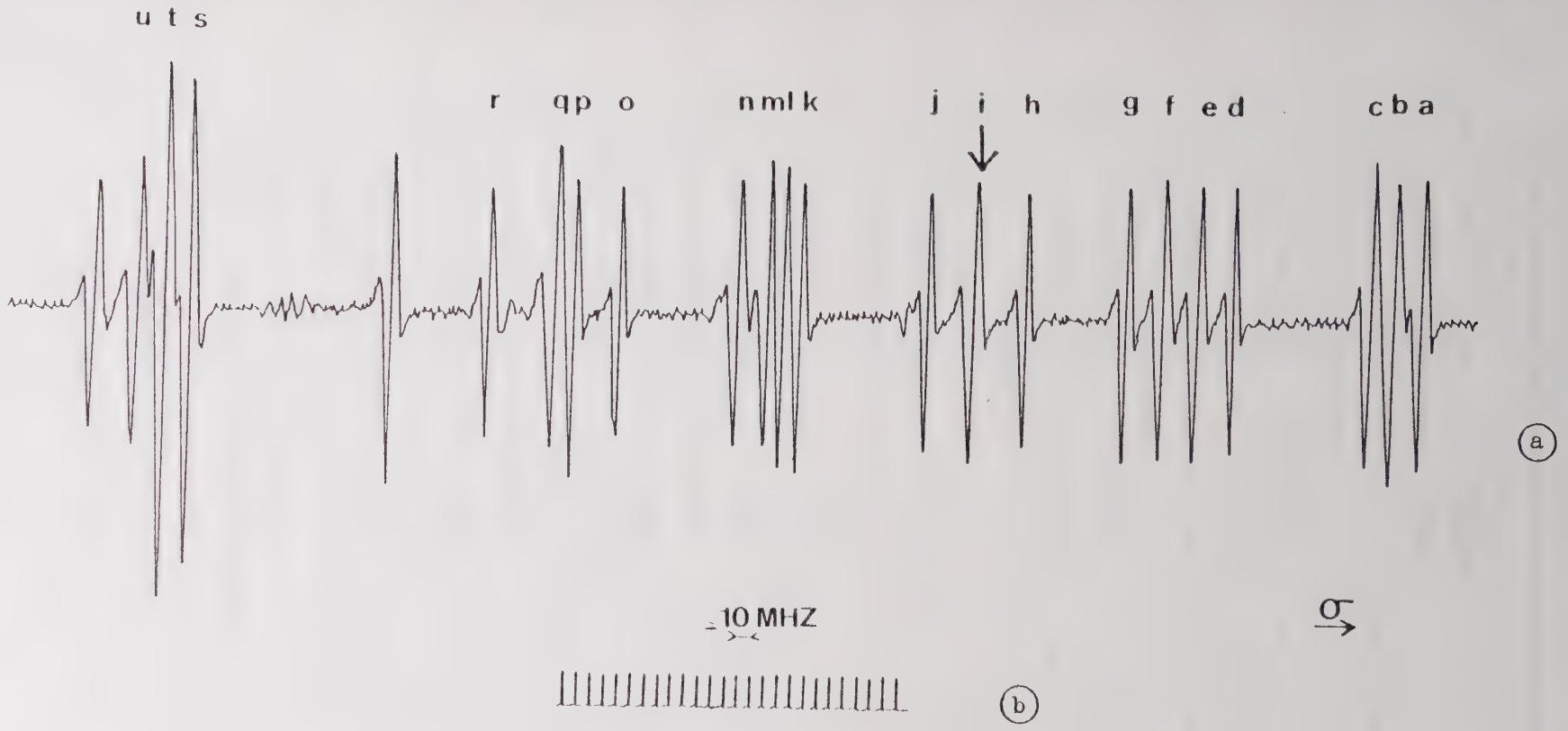


Figure 21

(a) Structure hyperfine de la raie de l'iode 47 R (9-2)

(b) Echelle de fréquence donnée par l'électronique du sigmamètre :
la distance entre deux "tops" correspond à 10 pas de 0,9359 MHz.

	Sigmamètre (MHz)	Battements de Fréquence (MHz)	Δν MHz
a	+ 304,9	+ 305,55	- 0,65
b	+ 290,1	+ 289,65	+ 0,45
c	+ 277,8	+ 277,52	+ 0,28
d	+ 182,5	+ 180,40	+ 2,1
e	+ 154,4	+ 154,21	+ 0,19
f	+ 135,7	+ 135,15	+ 0,55
g	+ 108,4	+ 108,72	- 0,32
h	+ 36,4	+ 34,74	+ 1,66
i	0	0	0
j	- 29,6	- 29,97	+ 0,37
k	- 129,9	- 130,55	+ 0,65
l	- 142,2	- 142,14	- 0,06
m	- 151,7	- 150,52	- 1,18
n	- 168,7	- 168,25	- 0,45
o	- 250,4	- 249,68	- 0,72
p	- 286,9	- 286,54	- 0,36
q	- 296,9	- 296,96	+ 0,06
r	- 336,6	- 335,85	- 0,75
s	- 562,5	- 562,11	- 0,39
t	- 583,4	- 583,62	+ 0,22
u	- 607,1	- 606,76	- 0,34

Mesures d'écarts de fréquence entre les composantes hyperfines de la raie 47R(9-2) de l'iode 127.

TABLEAU 7

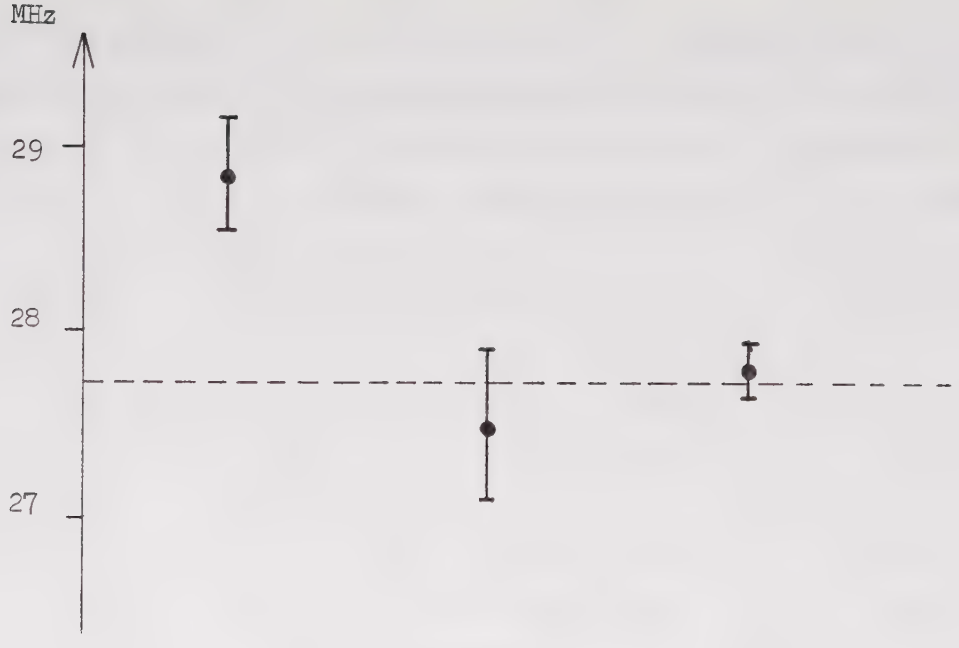
d) Exemples de mesures relatives.

La Figure (21) représente un enregistrement simultané d'une structure hyperfine d'une raie d'absorption saturée de la molécule d'iode et des tops de calibration du balayage de la fréquence du laser accordable. Il s'agit de la raie 47R (9-2) qui se trouve dans le profil Doppler de la raie du néon à $\lambda = 612$ nm (transition $3S_2 \rightarrow 2P_6$). Sur le Tableau (7) sont rassemblées deux séries de mesures d'écarts de fréquence entre la composante hyperfine "i", prise comme référence, et les 20 autres composantes de la raie. Les résultats obtenus à l'aide des tops de calibration du sigmamètre et correspondant à un enregistrement unique (première colonne) sont comparés à ceux obtenus par une méthode plus précise de battement de fréquence entre deux lasers, la fréquence du premier calée sur la composante "i" et celle du second successivement sur chacune des 20 autres composantes (dernière colonne) [36]. Les écarts de fréquence sont inférieurs à 1 MHz dans la quasi totalité des mesures (0,6 MHz en moyenne).

Le Tableau (8) montre un autre exemple donnant également une idée de la précision que peut atteindre le sigmamètre utilisé comme mesureur relatif de nombres d'ondes (ou de fréquence) : il s'agit de la mesure de l'écart entre les deux sous-niveaux hyperfins F'=1 et F'=2 du premier état excité $^2P_{1/2}$ du potassium naturel. La première valeur due à P. BUCK et I. I. RABI [37] est en désaccord, de 1,35 MHz, avec celle que nous avons obtenue au C.E.R.N. au cours des expériences consacrées à l'étude d'une série d'isotopes de potassium (valeur correspondant à la moyenne des mesures prises sur plusieurs enregistrements) [38]. Afin de vérifier notre mesure et confirmer par là même les propriétés de notre appareil, une troisième expérience plus précise a été effectuée en laboratoire [39] à l'aide d'un montage expérimental utilisant une modulation RF de la fréquence du laser accordable ; la valeur trouvée est en parfait accord avec notre résultat (voir Tableau 8).

$A(^2P_{1/2})$ ^{39}K (MHz)		
Appareil de Rabi [37]	Sigmamètre [38]	Modulation RF de la Fréquence du Laser [39]
28,85 (30)	27,5 (4)	27,80 (15)

TABLEAU 8



Positions relatives des différentes mesures du facteur $A(^2P_{1/2})$

e) Erreur due à la dispersion de l'indice de l'air.

Comme nous l'avons signalé au début de ce paragraphe, si le sigmamètre n'est pas placé sous vide, les variations de l'indice de l'air, en fonction de celles de la pression ou de la température, peuvent entraîner des erreurs systématiques. En effet : Prenons le cas d'un interféromètre de différence de marche δ asservie à l'aide d'un laser monomode de longueur d'onde λ_0 fixe. Dans le cas d'un appareil placé à l'air, ce n'est pas la distance géométrique δ qui est asservie mais la distance optique $n_0 \cdot \delta$ où n_0 représente l'indice de l'air à la longueur d'onde λ_0 ; l'effet de toute variation Δn_0 de l'indice, en fonction des variations ΔT ou ΔP de la température ou de la pression, sera exactement compensé par une correction adéquate sur δ, mais ceci uniquement pour la longueur d'onde λ_0 d'asservissement. Pour une longueur d'onde λ, issue d'un laser accordable et que l'on asservit cette fois sur l'interféromètre, la différence de marche "vue" est en fait égale à $n\,\delta$ où n est l'indice de l'air à la longueur d'onde λ. La variation correspondante Δn, en fonction des variations équivalentes ΔT et ΔP, sera différente de Δn_0. Si au cours d'un même enregistrement il y a une variation de T ou P, cela entraînera une erreur sur les écarts $\Delta\nu$ des fréquences mesurées qui sera au maximum égale à $\delta(\Delta\nu) = \dfrac{\Delta n - \Delta n_0}{n}\,\nu \simeq (\Delta n - \Delta n_0)\,\nu$. Bien que $(\Delta n - \Delta n_0)$ soit en fait très faible, puisqu'il s'agit d'une variation du second ordre en n, la fréquence optique ν est par contre élevée ; nous verrons ainsi que l'erreur $\Delta\nu$ peut atteindre quelques MHz par °C ou par torr. On peut noter que cette erreur est indépendante de la valeur proprement dite de la différence de marche δ, mais dépend uniquement de l'écart entre la longueur d'onde de la source de référence et celle du laser à colorant.

Les variations Δn de l'indice de l'air, en fonction de la pression et de la température, peuvent être calculées avec une excellente précision à partir des relations établies par J. C. OWENS [25]. Elles permettent un calcul très précis de l'indice de l'air pour toute

longueur d'onde optique comprise entre 2302 et 20586 Å , des pressions comprises entre 0 et 4 atm. et des températures de 240°K à 330°K .

On a (équation (26) de la réf. [25]) :

$$(n-1)\ 10^8 = \left[2371{,}34 + \frac{683939{,}7}{(130-\sigma^2)} + \frac{4547{,}3}{(38{,}9-\sigma^2)}\right] D_S$$

avec :

$$D_S = \frac{P_S}{T}\left[1 + P_S(57{,}90\times 10^{-8} - \frac{9{,}3250\times 10^{-4}}{T} + \frac{0{,}25844}{T^2})\right]$$

où $\sigma = \frac{1}{\lambda}$ est exprimé en μ^{-1} ,

P_S en millibars (P_0 = 1013,25 mb ≡ 760 mm Hg)

et T en degrés Kelvin (T_0 = 288,16°K ≡ 15°C) .

L'auteur établit des relations équivalentes permettant d'effectuer d'autres types de corrections qui tiennent compte des variations du degré d'humidité et de la concentration en CO_2 de l'atmosphère. L'amplitude de ces variations étant en général plus faible, elles affectent peu la stabilité à long terme de la différence de marche de l'interféromètre ; nous ne reproduisons donc pas les formules correspondantes dans ce mémoire. Rappelons cependant que, dans le cas d'interféromètres placés dans l'air et destinés aux mesures absolues de longueurs d'ondes, ce type de corrections est malgré tout nécessaire [19][20].

Sur le Tableau 9 nous avons rassemblé quelques valeurs de l'indice de l'air pour différentes longueurs d'ondes comprises entre 4500 et 8500 Å :

- à température et pression standard :
  T_0 = 288,16°K et P_0 = 1013,25 mbars (1ère ligne) ,
- à T_0 + 1°C et P_0 (2ème ligne) ,
- à T_0 et P_0 + 1 torr (3ème ligne) .

La différence Δn est calculée pour chacune des longueurs d'ondes ; sur le Tableau (10), nous avons reporté les valeurs $(\Delta n - \Delta n_0)$ où Δn_0

λ nm	450	500	590	638 (λ_0)	720	850
$(n-1) \times 10^8$ à T_0 , P_0	28051,90	27895,97	27712,31	27651,87	27561,51	27475,63
T_0 + 1°C , 80	27954,60	27799,22	27616,19	27555,96	27465,91	27380,33
T_0 , P_0 + 1 torr	28088,82	27932,69	27748,79	27688,27	27597,79	27511,80

$\Delta n \times 10^8$ 1°C	97,30	96,75	96,12	95,91	95,60	95,30

$\Delta n \times 10^8$ 1 torr	-36,92	-36,72	-36,48	-36,40	-36,28	-36,17

TABLEAU 9

λ nm	450	500	590	720	850
$(\Delta n - \Delta n_0)\ 10^8$ pour 1°C et/λ_0	1,39	0,84	0,21	-0,31	-0,61
pour 1 torr et/λ_0	-0,52	-0,32	-0,08	+0,12	+0,23

$\Delta\nu$ MHz/°C	+9,26	+5,04	+1,07	-1,29	-2,15

$\Delta\nu$ MHz/torr	-3,46	-1,92	-0,41	+0,50	+0,81

TABLEAU 10

est la différence d'indice à la longueur d'onde $\lambda_0 = 633$ nm (pour 1°C et 1 torr respectivement). Nous avons ensuite calculé la variation $\Delta\nu$ correspondante pour chaque longueur d'onde par rapport à λ_0. Pour des longueurs d'ondes proches de λ_0 ces variations sont de l'ordre de 1 MHz/°C et 0,5 MHz/torr mais peuvent atteindre plusieurs MHz/°C (ou par torr) pour des longueurs d'onde très éloignées ; leurs amplitudes augmentent plus rapidement vers le bleu. L'erreur introduite par de telles variations sera d'autant plus importante que la durée de l'enregistrement d'une structure atomique sera plus longue ; si ces variations sont approximativement linéaires pendant toute la durée de l'expérience, la moyenne de deux enregistrements consécutifs, l'un effectué à ν croissant et l'autre à ν décroissant, compensera l'erreur introduite. Toutefois pour de très longs enregistrements, de telles variations ne peuvent être linéaires et il sera alors préférable de placer l'appareil sous vide ou dans une enceinte hermétique enfermant un volume de gaz constant.

4 - Description de l'appareil.

Pour cette application particulière du sigmamètre, qui concerne donc l'asservissement et le pilotage de la fréquence des lasers accordables, il n'est pas nécessaire de construire un appareil aussi sophistiqué que celui décrit au cours des chapitres précédents. En effet, les mesures relatives de nombres d'ondes proches, effectuées par exemple au cours d'expériences de spectroscopie à très haute résolution, n'intéressent, en général, qu'un domaine spectral assez restreint (quelques GHz ou, au plus, quelques dizaines de GHz, soit quelques cm^{-1} ; voir 2ème partie : Francium). Il n'est donc pas nécessaire d'avoir un appareil qui réponde aux critères d'achromaticité de la différence de marche, de celui du déphasage entre $\sin\varphi$ et $\cos\varphi$ ou encore de l'origine de phases (définis au Chapitre III) de manière aussi sévère que pour un appareil destiné aux mesures absolues ; d'autant plus qu'actuellement le domaine spectral balayé par les lasers accordables ne dépasse pas quelques centaines d'Angströms ($\approx$ 1000 à 1500 cm^{-1}) de manière multimode

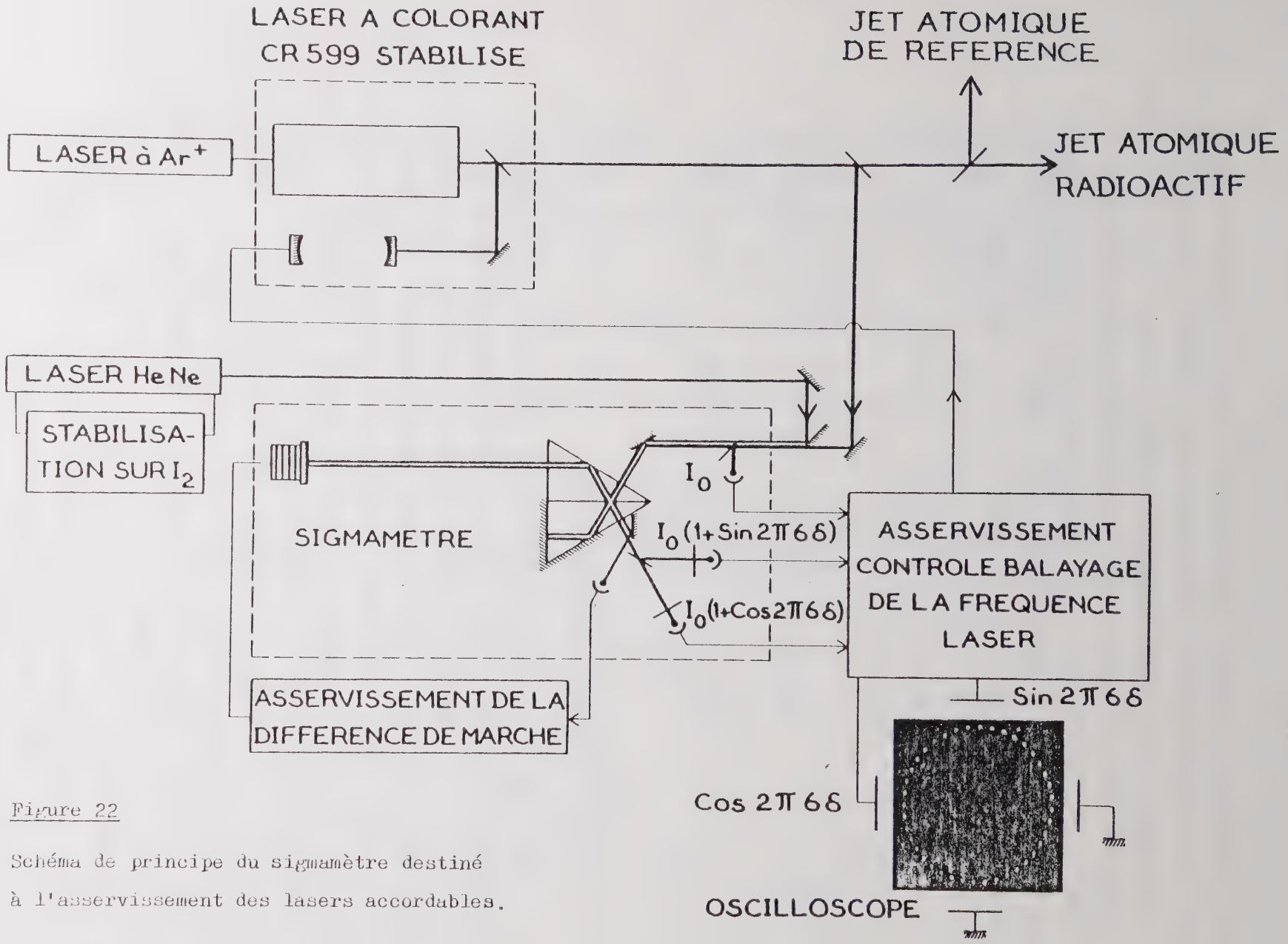


Figure 22

Schéma de principe du sigmamètre destiné à l'asservissement des lasers accordables.

(spectroscopie à basse résolution), domaine réduit à quelques cm^{-1} pour un balayage monomode (spectroscopie à haute résolution).

La principale cause pouvant entraîner un défaut d'achromatisme est due à la dispersion de l'indice du verre utilisé pour l'optique de l'interféromètre ; elle est parfaitement négligeable pour les domaines spectraux définis plus haut (de l'ordre de 2.10^{-3} pour 50 nm et un verre courant). Dans ces conditions l'optique nécessaire à la construction de l'interféromètre peut être beaucoup plus simple que celle décrite au Chapitre III. Le schéma de principe d'un tel appareil simplifié, uniquement destiné à l'asservissement des lasers accordables est représenté sur la Figure (22). Son optique est en fait constituée d'un biprisme de Koster . Il possède deux faces servant de dioptre totalement réfléchissant (un dans chacun des bras de l'interféromètre) ; ceci va nous permettre d'obtenir les deux signaux en quadrature de phase que l'on désire détecter à la sortie de l'interféromètre. Pour obtenir ce déphasage, il est nécessaire d'introduire une dissymétrie entre les deux réflexions totales ; celle-ci est assurée par un traitement métallique déposé sur la moitié de l'une des deux faces considérées (voir Fig. 22). En effet, la différence de plase entre les fractions, du faisceau laser, polarisées orthogonalement par rapport au plan d'incidence de la réflexion totale, est différente pour une réflexion verre-air ($\Psi_{\text{verre-air}}$ est quasiment constant dans tout le visible comme nous l'avons montré au §.1 du Chapitre III) ou pour une réflexion verre-métal ; le calcul montre que $\Psi_{\text{verre-métal}}$ ne peut être approximativement achromatique que dans de relativement faibles domaines spectraux comme ceux balayés par les lasers accordables. L'achromatisme de la différence de phase $\Psi = \Psi_{\text{verre-air}} - \Psi_{\text{verre-métal}}$ sera donc essentiellement limité par celui de $\Psi_{\text{verre-métal}}$ (*). De manière générale, puisque $\Psi_{\text{verre-métal}}$ varie, on ne peut pas, contrairement au sigmamètre décrit précédemment, optimiser le

---

(*) C'est la raison pour laquelle cette solution, simple, ne peut pas être retenue pour la réalisation d'un sigmamètre mesureur absolu.

déphasage Ψ par un choix judicieux de l'indice du verre ou de l'angle d'incidence pour que celui-ci soit égal à $\frac{\pi}{2}$. Les deux signaux détectés séparément à la sortie de l'interféromètre ne sont donc pas en quadrature de phase et l'expérience montre qu'au lieu d'être circulaire, le déplacement du spot sur l'écran d'oscilloscope, en fonction des variations de σ, se fait suivant une ellipse. Toutefois, dans la mesure où ce déphasage total n'est pas nul (ellipse réduite à une droite), il sera toujours possible d'obtenir un cercle en ajustant d'une part l'orientation de l'axe de la polarisation des analyseurs à la sortie de l'interféromètre et, d'autre part, le gain relatif entre les deux détecteurs placés derrière les analyseurs. Par exemple, si le faisceau laser d'intensité I_0 qui traverse l'interféromètre est polarisé à 45° par rapport au plan d'incidence du prisme à réflexion totale de telle sorte qu'à la sortie de l'interféromètre les intensités crêtes $I_{\parallel}$ et $I_{\perp}$ des fractions polarisées orthogonalement, par rapport à ce plan, sont identiques (*), il suffit de tourner l'axe des analyseurs, placés à la sortie de l'interféromètre, de 45° par rapport à l'orientation initiale (parallèle et perpendiculaire au plan d'incidence) et d'augmenter le gain du premier détecteur (correspondant à $I_{\parallel}$) d'un facteur $tg(\frac{\varphi_2-\varphi_1}{2})$ par rapport à celui de l'autre détecteur ; $\varphi_2-\varphi_1$ étant égal au déphasage effectif entre $I_{\parallel}$ et $I_{\perp}$. Le déplacement du spot redevient circulaire et l'angle $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ est linéaire en fonction de σ.

La valeur de la différence de marche δ est choisie en fonction des propriétés du laser que l'on désire asservir. Nous avons vu que dans notre cas (asservissement de laser monomode) la différence de marche est égale à 200 cm (150 MHz par tour), ce qui permet, compte tenu des erreurs décrites au paragraphe précédent, d'effectuer des

---

(*) soit $I_{\parallel} \propto I_0 \cos(2\pi\sigma\delta + \varphi_1)$
$I_{\perp} \propto I_0 \cos(2\pi\sigma\delta + \varphi_2)$

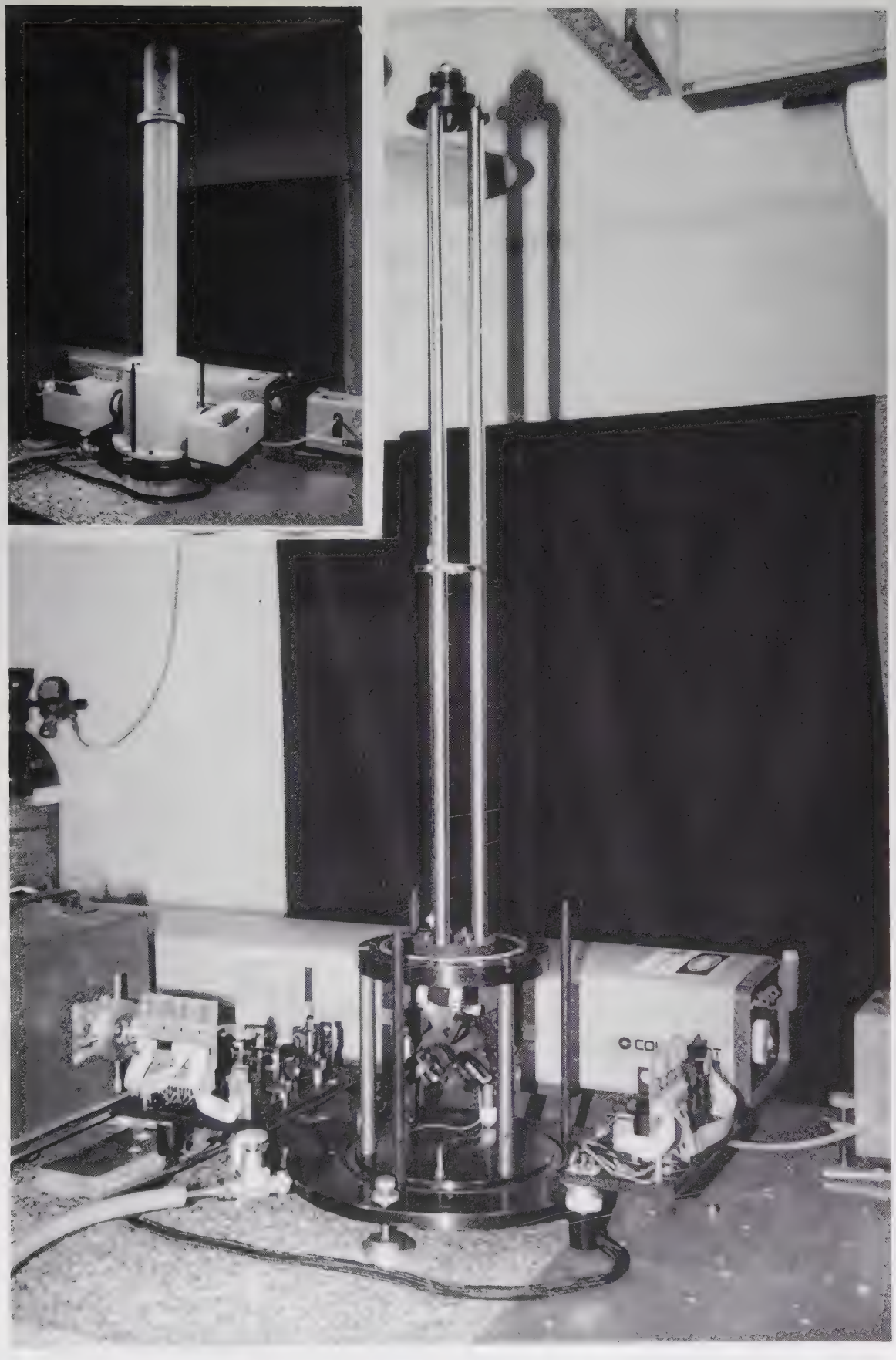


Figure 22 : Vue d'ensemble du sigmamètre (de 2 m de différence de marche) destiné à l'asservissement et au pilotage de la fréquence des lasers accordables. L'appareil peut être placé sous vide.

mesures d'écarts relatifs de fréquences avec une incertitude de l'ordre ou légèrement inférieure à 1 MHz (*). Cette différence de marche est asservie à l'aide d'un laser He-Ne stabilisé sur l'iode (voir §.5 du Chapitre III). Nous avons vu que, pour de fortes variations de pression ou de températures, et si l'on doit faire des enregistrements de très longues durées, il est préférable de placer l'appareil sous vide ou simplement dans une enceinte enfermant un volume de gaz constant. Une transformation de l'appareil utilisé dans les expériences C.E.R.N. permet de le faire fonctionner dans de telles conditions, ce qui améliore notablement la stabilité à très long terme du sigmamètre et diminue les sources d'erreurs systématiques. La Figure (23) représente une photographie de l'ensemble après modifications. Trois voies optiques sont prévues : l'une concerne l'asservissement de la différence de marche, les deux autres sont destinées à l'asservissement de la fréquence de deux lasers accordables indépendants.

(*) Cette incertitude est indépendante de la valeur de l'écart $\Delta\sigma$ mesuré ; la précision relative $\frac{d\,\Delta\sigma}{\Delta\sigma}$ des mesures sera donc d'autant meilleure que l'écart mesuré est plus grand.

C - MESURE ABSOLUE DE LA RAIE à λ = 587,6 nm DE L'HELIUM ^{4}He (transitions $2p\ ^3P_J - 3d\ ^3D_J$)

1 - Position du problème.

Dans l'introduction générale, nous avons rappelé l'intérêt que présentent les mesures absolues de transitions atomiques dans le domaine optique. De telles mesures trouvent des applications métrologiques immédiates [8][9] mais elles servent également de test aux théories atomiques les plus récentes [40]. Ainsi la théorie atomique relativiste de Dirac associée à l'électrodynamique permettent de calculer avec précision les corrections à apporter aux niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène. Une telle connaissance rend possible la détermination (à 10^{-9}) de la constante de Rydberg à partir de mesures spectroscopiques effectuées sur l'atome [5] [6].

Pour les atomes à deux électrons, les choses se compliquent notablement ; en effet, outre les corrections relativistes, d'autres termes dus au couplage entre spins et orbites des électrons viennent s'ajouter à l'équation de Schrödinger [40]. Des expériences et des calculs théoriques effectués sur la transition 2s - 2p de l'hélium et de ses séquences isoélectroniques ont été discutés récemment par DE SERIO et al. [7]. Pour les transitions $2s\ ^3S_1 - 2p\ ^3P_{0,1,2}$ (à λ = 1083,3 nm) de l'hélium les valeurs théoriques sont plus précises que pour les autres transitions, aussi il nous a paru intéressant de mesurer expérimentalement la longueur d'onde de ces transitions afin de vérifier le "bien-fondé" de ces théories.

Une telle mesure n'a pu être effectuée directement faute de posséder une source de rayonnement laser monomode et accordable à cette longueur d'onde. Toutefois, en mesurant les transitions $2p\ ^3P - 3d\ ^3D$ à λ = 587,6 nm et en combinant ces mesures avec celles obtenues récemment par E. GIACOBINO et al. [41] sur les transitions $2s\ ^3S_1 - 3d\ ^3D$ on

peut déduire la valeur des transitions $2s\ ^3S_1 - 2p\ ^3D_3$ et comparer cette valeur à celle obtenue par un calcul théorique [7]. L'expérience que nous avons réalisée est semblable à celle effectuée sur les transitions du néon (Chap. IV), aussi sera-t-elle décrite succintement. Nous donnerons ensuite les résultats obtenus.

2 - Niveaux d'énergie.

Sur la Figure (24) nous avons présenté les seuls niveaux d'énergie de l'hélium concernés dans cette expérience. Il s'agit :

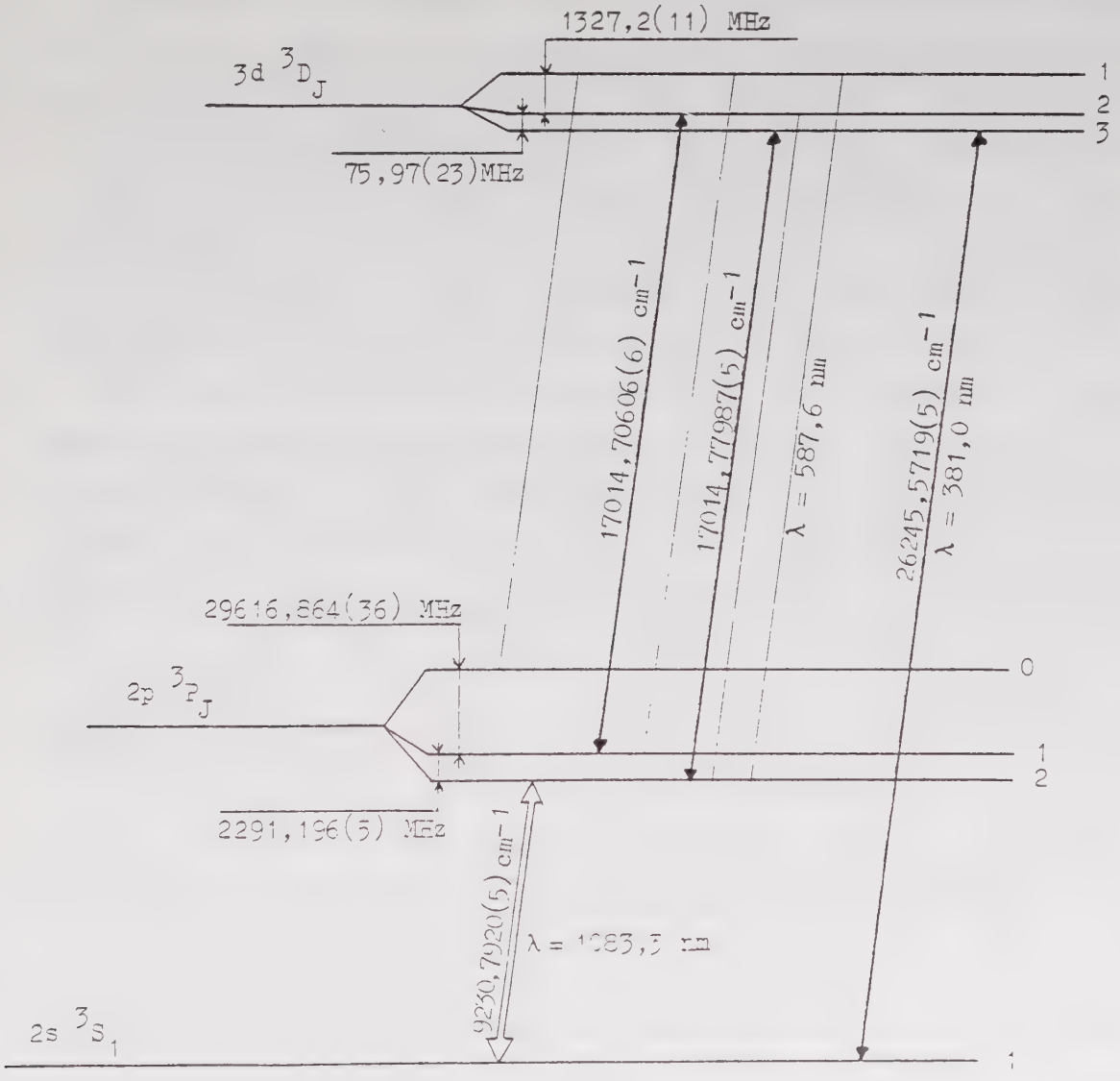


Figure 24 : Niveaux d'énergie de l'hélium.

- de l'état métastable $2s\ ^3S_1$,

- de l'état $2p\ ^3P_J$, avec $J = 0$, 1 ou 2, dont la structure est connue avec une précision de quelques kilohertz,

- et de l'état $3d\ ^3D_J$, avec $J = 1$, 2 ou 3 , dont la structure est connue avec une précision de l'ordre ou légèrement inférieure à 1 MHz.

3 - Mesure absolue de la transition $2d\ ^3S_1 - 3d\ ^3D_3$.

Une expérience récente [41] a donc permis de mesurer la longueur d'onde absolue de la transition $2s\ ^3S_1 - 3d\ ^3D_3$. Il s'agit d'une expérience de spectroscopie sub-Doppler à deux photons [42] utilisant un laser à colorant en anneau, continu, monomode et accordable (à $\lambda = 760$ nm) et une cellule d'hélium placée dans une cavité Fabry-Perot (cette cavité permet d'augmenter la densité de l'énergie du rayonnement vue par les atomes et donc augmenter la probabilité de transition de l'état $2s\ ^3S_1$ vers les états nS ou nD avec $3 < n < 6$). Le niveau métastable est peuplé par une décharge haute fréquence. Celle-ci est modulée, ce qui permet, à l'aide d'une détection synchrone, d'accorder la fréquence du laser à la résonance d'une transition en détectant la lumière de fluorescence, émise par les atomes, modulée à la même fréquence. La fréquence du laser est mesurée à l'aide d'un lambdamètre [20]. En tenant compte des corrections dues à la diffraction des faisceaux gaussiens et à la dispersion de l'indice de l'air, les transitions $2\ ^3S \rightarrow n\ ^3S$ et $n\ ^3D$ ont été mesurées avec une précision de l'ordre de 2.10^{-8}.

La mesure effectuée sur la transition $2s\ ^3S_1 - 3d\ ^3D_3$ est égale à

$$26245{,}5719(5)\ cm^{-1} .$$

4 - Mesures des transitions $2p\ ^3P_1 - 3d\ ^3D_2$ et $2p\ ^3P_2 - 3d\ ^3D_3$.

L'expérience que nous avons entreprise est semblable en tout point à celle effectuée sur les raies du néon dont les mesures et le dispositif expérimental ont été exposés au paragraphe (5) du Chapitre IV.

Il s'agit donc d'une expérience de spectroscopie par absorption saturée en cellule externe utilisant un laser à colorant, continu, monomode et accordable ; la cavité du laser est modulée à 5,6 KHz, afin d'asservir, à l'aide d'une détection synchrone, la fréquence du rayonnement sur chacune des transitions atomiques à mesurer. La cellule a environ 8 cm de longueur et le niveau métastable est peuplé à l'aide d'une décharge haute fréquence. Le montage d'absorption saturée étant double et comportant également une cellule contenant de l'iode, nous avons également mesuré la composante hyperfine "i" de deux raies d'absorption saturée de cette molécule (identifiée à l'aide de l'Atlas de l'Iode [43]) qui se trouvent au voisinage proche des raies de l'hélium.

Les mesures effectuées sur les raies de l'iode n'apportent aucune aide particulière à l'expérience présente ; cependant, tout comme lors des mesures effectuées sur les raies D du sodium (Annexe III), celles-ci peuvent conduire à une meilleure détermination du nombre d'ondes des raies de l'hélium, du fait que leurs positions peuvent être déterminées avec une très grande précision de même que les écarts de fréquence entre ces raies et celles de l'hélium.

Plusieurs mesures ont été effectuées à différentes pressions (0,5 , 1 et 2 torr) ; à la précision des mesures, aucun déplacement par pression n'a été mis en évidence. Les valeurs sont rassemblées dans le Tableau (11). L'erreur standard de ces mesures correspond à une précision de $\approx 4.10^{-9}$ (2 MHz). En tenant compte des différentes sources d'erreur discutées au Chapitre V, la précision des mesures est environ égale à 10^{-8} (5 MHz).

En combinant cette mesure avec celle donnée à la fin du paragraphe précédent, on déduit la valeur de la transition

$$2s\ ^3S_1 \rightarrow 2p\ ^3P_2 = 9230,7920(5)\ cm^{-1}$$

dont la précision ($\pm$ 15 MHz) est essentiellement limitée par celle de la mesure en deux photons. Cette valeur expérimentale diffère de

	raies de l'iode cm^{-1}		raies de l'hélium cm^{-1}	
	85 R (16-2) N° 430	80 P (16-2) N° 431	$2p\,^3P_1 - 3d\,^3D_2$	$2p\,^2P_2 - 3d\,^3D_3$
	17014,57349	17015,06489	17014,70605	17014,77993
	17014,57310	17015,06470	17014,70581	17014,78003
	17014,57330	17015,06480	17014,70616	17014,77984
	17014,57327	17015,06497	17014,70621	17014,77999
			17014,70603	17014,77975
			17014,70608	17014,77970
Valeur moyenne	17014,57329(8)	17015,06484(6)	17014,70606(6)	17014,77987(5)
écart type	5.10^{-9}	4.10^{-9}	4.10^{-9}	3.10^{-9}

TABLEAU 11

0,0087(5) cm^{-1} de la valeur théorique (= 9230,7832 cm^{-1}) déduite des calculs de ACCAD et al. [44] et de ceux de ERMOLAEV [45] déterminant les corrections dues au déplacement de Lamb des deux niveaux S et P (0,135 cm^{-1} et 0,038 cm^{-1} respectivement). La précision sur la mesure de cette transition pourrait être accrue en effectuant une mesure directe à λ = 1083,3 nm , par exemple à l'aide d'un laser à centre coloré [46]. Une telle mesure permettrait également de confirmer la valeur expérimentale précédente.

CONCLUSION.

Nous avons décrit successivement deux sigmamètres :

- Le premier est destiné à la mesure absolue de nombres d'ondes de rayonnement issu de lasers fonctionnant en continu ou en impulsions. Cet appareil est achromatique dans un domaine spectral de 350 nm à 1500 nm.

La précision que nous pouvions espérer atteindre par cette méthode ($\simeq 10^{-8}$) est confirmée par les mesures que nous avons effectuées. En effet, nous avons vu que l'écart standard sur la moyenne de quelques mesures peut atteindre une précision de l'ordre de 3 à 5.10^{-9} ($\simeq$ 2 à 3 MHz) et que l'incertitude d'une mesure unique correspond à une précision de l'ordre de 10^{-8}.

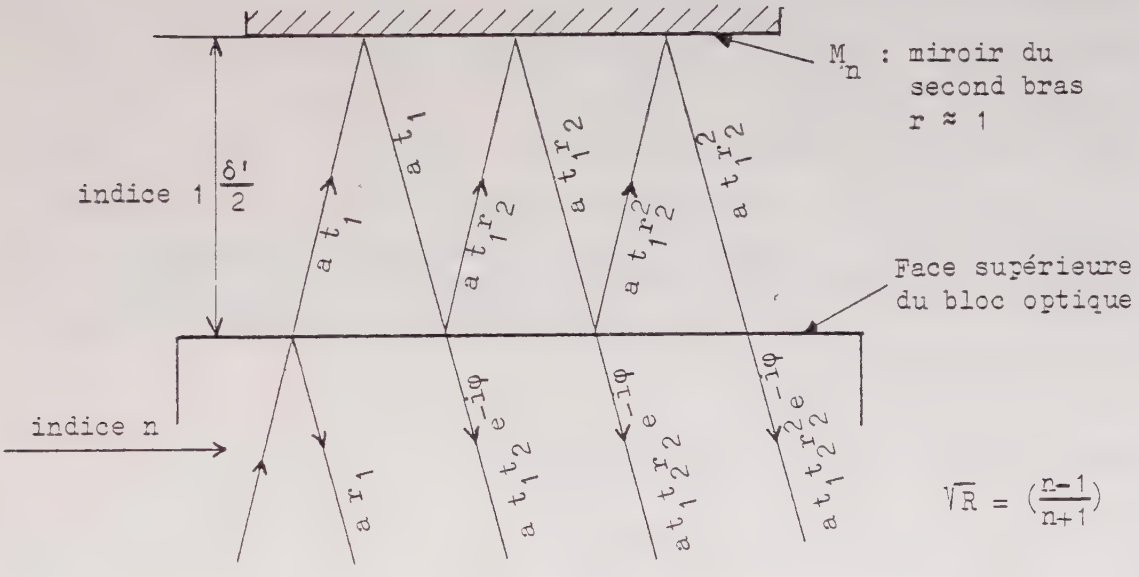
Pour augmenter cette précision, il faudrait soit pouvoir effectuer des mesures de la phase $\varphi = 2\pi\sigma\delta$ à mieux que 1/100ème de tour, soit augmenter la valeur de la plus grande différence de marche. Les erreurs dues aux réglages optiques des faisceaux laser ou de l'interféromètre prendront alors une importance croissante ainsi que les erreurs dues à l'utilisation de faisceaux gaussiens dont les corrections devront être faites avec encore plus d'application. Toutes ces conditions ne peuvent être satisfaites sans compliquer notablement le montage expérimental. Notre système tel qu'il est, sans être tout à fait simple, a l'avantage d'être relativement compact pour pouvoir être utilisé efficacement dans diverses expériences de spectroscopie à caractère métrologique.

- Le second appareil est plus particulièrement destiné au pilotage de la fréquence des lasers accordables et aux mesures relatives de fréquences optiques. Le balayage de cette fréquence peut être effectué de manière digitale par pas aussi petits que 1 MHz, dont la valeur est parfaitement déterminée par la mesure de la différence de marche δ de l'instrument (nous avons vu qu'avec un appareil achromatique la différence de marche peut être mesurée avec une précision meilleure que 10^{-8}). La précision sur la linéarité du balayage, donc sur la mesure d'écart de fréquences, est indépendante de la valeur de l'intervalle spectral balayé. Toutes nos expériences ont montré que l'incertitude sur leur mesure est légèrement inférieure à 1 MHz.

ANNEXE I

ANNEXE I

Calcul de l'erreur de phase introduite par la réflexion parasite due à la face supérieure de l'ensemble optique.



$$t_1 = 1 + r_1$$
$$t_2 = 1 + r_2$$
$$r_2 = -r_1$$
$$|r| = (\frac{n-1}{n+1}) \ .$$

Soit $\frac{\delta'}{2}$ la distance du miroir M_n au dioptre air-verre M'_0 .

L'amplitude réfléchie par l'ensemble miroir + dioptre à une distance $x > \frac{\delta'}{2}$ est égale à :

$$ar = a\, e^{-i\varphi} \left[a\, r_1 + a\, t_1 t_2\, e^{-i\varphi'} + a\, t_1 t_2\, r_2\, e^{-2i\varphi'} + a\, t_1 t_2\, r_2^2\, e^{-3i\varphi'} + \ldots \right] \quad (1)$$

avec $\varphi = \omega(t - \frac{x}{c})$ et $\varphi' = \omega(t - \frac{\delta'}{c})$

$$ar = a\, e^{-i\varphi} \left\{-r_2 + t_1 t_2\, e^{-i\varphi'} \left[1 + r_2\, e^{-i\varphi'} + r_2^2\, e^{-2i\varphi'} + \ldots r_2^n\, e^{-in\varphi'}\right]\right\} \tag{2}$$

or : $t_1 t_2 = (1 - r_2^2)$

d'où :

$$ar = a\, e^{-i\varphi} \left(-r_2 + (1 - r_2^2)\, e^{-i\varphi'} \frac{1}{1 - r_2\, e^{-i\varphi'}}\right)$$

$$ar = a\, e^{-i\varphi'} \left(\frac{1 - r_2\, e^{i\varphi'}}{1 - r_2\, e^{-i\varphi'}}\right) e^{-i\varphi} \tag{3}$$

posons : $$\frac{1 - r_2\, e^{i\varphi'}}{1 - r_2\, e^{-i\varphi'}} = e^{-i\theta} \quad ; \tag{4}$$

l'amplitude $\left|\frac{ar}{a}\right|$ est égale à 1 mais le déphasage est perturbé de $e^{-i\theta}$.
L'intensité détectée à la sortie de l'interféromètre est égale à :

$$I = |ar + ar_0|^2$$

avec $ar_0 = a\, e^{-i\varphi_0}$ et $\varphi_0 = \omega(t - \frac{x_0}{c})$

$$I = \left| a\, e^{-i(\varphi + \varphi' + \theta)} + a\, e^{-i\varphi_0} \right|^2 \tag{5}$$

les termes en ωt disparaissent ; posons $2a^2 = I_0$ par construction
$\delta \approx \delta'$ (soit $x - x_0 \approx 0$)

$$I = I_0 \left\{1 + \cos[2\pi\sigma\delta + \theta + 2\pi\sigma(x - x_0)]\right\} \quad . \tag{6}$$

Le terme en $2\pi\sigma\delta$ correspond au terme classique et θ représente l'erreur de phase périodique en δ et $2\pi\sigma(x - x_0) = \theta_0$ représente l'origine pour laquelle $\theta = 0$.

Pour calculer θ on utilise la relation :

$$\operatorname{tg} \frac{\theta}{2} = i \left(\frac{1 - e^{-i\theta}}{1 + e^{-i\theta}}\right) \quad ; \tag{7}$$

portant (4) dans (7), il vient :

$$\operatorname{tg} \frac{\theta}{2} = \frac{r_2 \sin \varphi'}{1 - r_2 \cos \varphi} \qquad (8)$$

donnant la relation du paragraphe 2) du Chapitre IV

$$\theta = 2 \operatorname{Arctg} \left(\frac{-\sqrt{R} \sin (\varphi - \theta_0)}{1 - \sqrt{R} \cos (\varphi - \theta_0)} \right) .$$

La variation de θ_0 en fonction de σ est d'autant plus petite que $(x - x_0)$ est proche de zéro, c'est-à-dire la précision avec laquelle on a réalisé l'achromatisme de l'appareil. Nous avons mesuré expérimentalement que cette variation ne dépasse pas $\frac{\pi}{3}$ dans un domaine spectral de 6800 cm^{-1} (soit moins de $\frac{1}{2}$ tour dans tout le visible) ce qui correspond à une épaisseur optique $\Delta\delta = x - x_0 \approx 0{,}25\ \mu$. La différence des épaisseurs de verre entre les deux bras est donc de l'ordre de $\Delta c = \frac{(x - x_0)}{2n} \approx 0{,}07\ \mu$ qui est inférieure à la valeur limite $(0{,}15\ \mu)$ obtenue au paragraphe 4 du Chapitre IV.

ANNEXE II

ANNEXE II

Nous avons vu, au paragraphe 3) du Chapitre IV, que les différences de marche du sigmamètre sont calibrées à l'aide de quatre sources de référence connues à 10^{-9} près environ. Deux de ces sources sont fournies par des lasers He-Ne asservis sur l'iode et les deux autres par un laser à colorant continu monomode et accordable dont la fréquence est successivement asservie sur l'une des composantes hyperfines de deux raies de l'iode situées au voisinage des raies D_1 et D_2 du sodium. La description de cette expérience est reportée dans l'annexe suivante. Dans cette annexe nous nous proposons, après un bref rappel des notations spectroscopiques utilisées pour les molécules diatomiques, de décrire succintement les deux lasers He-Ne que nous avons construits à partir du modèle décrit dans la thèse de A. BRILLET [70].

1 - NOTATIONS SPECTROSCIPIQUES ET STRUCTURE HYPERFINE DES RAIES DE LA MOLECULE D'IODE.

Les transitions électroniques entre l'état fondamental $X\ ^1\Sigma_{g^+}$ l'état excité $B\ ^3\Pi_{0^+u}$ de la molécule d'Iode 127 forment un spectre très dense d'absorption dans le visible [43]. En effet, on peut mettre en évidence environ 10 transitions par cm^{-1}. Dans le système B-X , seules les transitions $\Delta J = \pm 1$ étant permises, n'apparaitront que des raies appartenant à des branches P et R .

Chaque transition est notée par :

- le nombre quantique de vibration v" pour l'état fondamental X ;

- le nombre quantique J" caractérisant le niveau rotationnel du niveau vibrationnel v" ;

- la lettre P (correspondant à des transitions $\Delta J = -1$) ou R (correspondant à des transitions $\Delta J = +1$) ;

- le nombre quantique de vibration v' de l'état excité B .

Ainsi la raie d'iode 127 R (11-5) correspond à la transition qui part du niveau rotationnel J" = 127 , du niveau vibrationnel v" = 5 de l'état X , vers le niveau vibrationnel v' = 11 de l'état excité B (où J' est donc égal à 128).

A la température ambiante, seuls les premiers niveaux vibrationnels v" de l'état X sont peuplés thermiquement. L'absorption d'un rayonnement monochromatique sera généralement d'autant plus importante que la longueur d'onde du rayonnement correspond à une transition partant d'un niveau de nombre quantique v" petit.

L'interaction entre le moment magnétique des noyaux de spin $I = \frac{5}{2}$ et le moment orbital des électrons donne naissance à une structure hyperfine. Les niveaux de spin total pair sont appelés para , ceux de spin total impair ortho ; leur dégénérescence respective est de 15 et 21 dans l'iode. Les transitions électroniques permises ont la même dégénérescence sur chacun des niveaux inférieur et supérieur mais, pour ce dernier, l'interaction moment magnétique - moment orbital étant plus faible, la structure est plus resserrée. On observe donc 15 ou 21 composantes principales ; les composantes satellites sont d'autant plus faibles que le nombre quantique rotationnel est grand ; en général, ces composantes ne sont pas observées.

- Pour les structures à 21 composantes hyperfines, on note, en fonction de λ , respectivement a, b, c,..., s, t et u chacune d'entre elles.

- Pour les structures à 15 composantes, on utilise la même notation mais sans les lettres a, c, h, j, s et u .

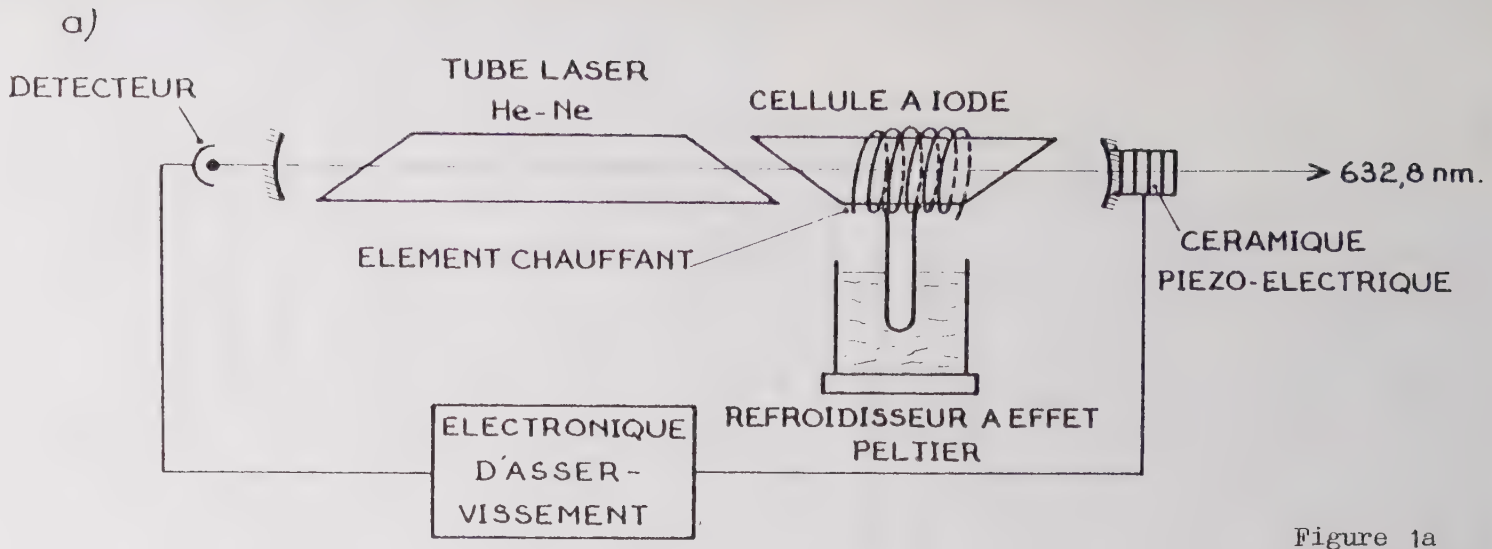


Figure 1a

Iaser à 633 nm

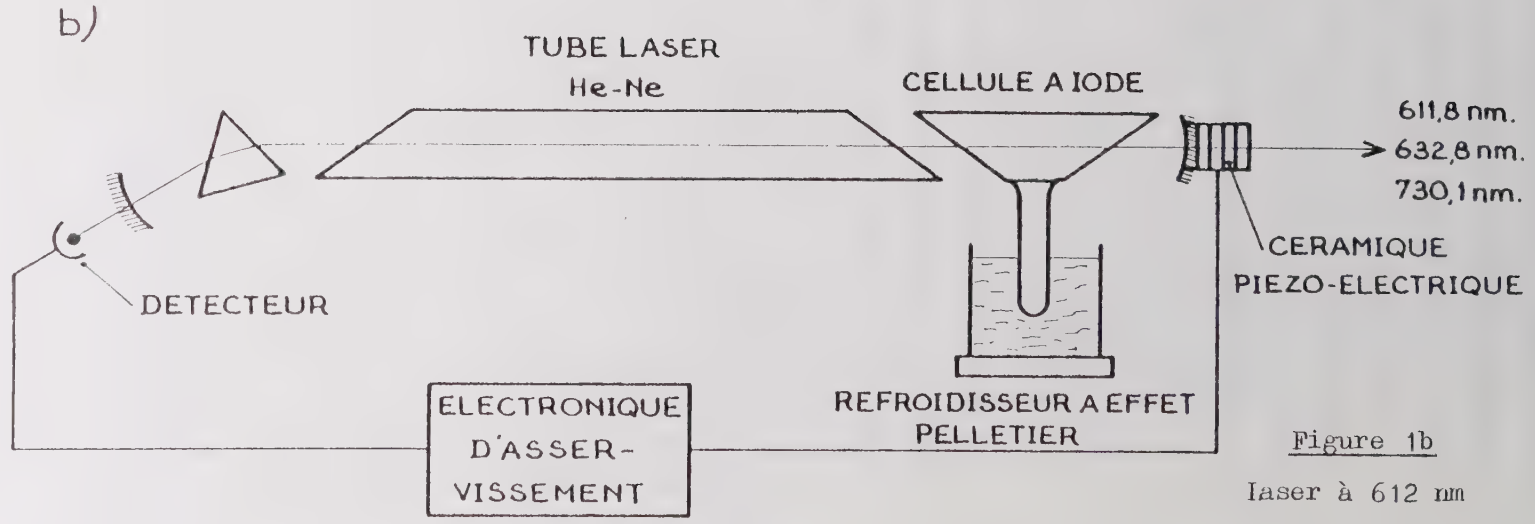


Figure 1b

Iaser à 612 nm

Au paragraphe 3) du Vhapitre VI, nous avons donné un exemple de structure hyperfine à 21 composantes ; deux autres exemples de structure à 15 composantes sont donnés dans l'annexe suivante.

2 - DESCRIPTION DES LASERS He-Ne .

a) Laser à $\lambda = 633$ nm .

Le premier laser fonctionne à $\lambda = 633$ nm (transition $3S_2 - 2P_4$ du néon) ; la raie de l'iode qui se trouve dans le profil Doppler de celle du néon est la raie 127 R (11-5) . Les composantes hyperfines a, b, c de cette raie sont centrées au sommet de la courbe de gain de notre tube laser (CW Radiation, type LT_2) ; celle que l'on utilise pour asservir la fréquence du laser est la composante b sont le nombre d'ondes est calculé à partir de la longueur d'onde de la composante hyperfine "i" recommandée par le CCDM en 1973 [32] , soit : $\lambda_i = 632\ 991\ 399{,}0$ Fm ; en utilisant $\sigma_b - \sigma_i = 291{,}917$ MHz [70] , on déduit :

$$\sigma_b = 15798{,}01271(1)\ \text{cm}^{-1} .$$

La Figure 1-a représente le schéma de la cavité laser dans laquelle est placé un tube He-Ne et une cellule munie de fenêtres à angle de Brewter renfermant de l'iode sous une pression contrôlable. La longueur totale de la cavité est de 36 cm. En l'absence de cellule interne, 2 à 3 modes longitudinaux distants de 420 MHz environ peuvent osciller simultanément. En présence de la cellule, l'absorption par les molécules d'iode introduit des pertes de favorise l'oscillation en mode unique. En fait, le niveau v" étant égal à 5 , cette absorption est relativement faible ; on chauffe, alors, la cellule (vers 150°C environ) pour augmenter la population du niveau v" et donc le contraste des pics d'absorption saturée observés. Toutefois, afin de ne pas augmenter le fond continu

d'absorption vers les niveaux dissociatifs, il est necessaire de maintenir une faible pression de vapeur saturante dans la cellule. Cette cellule possède un queusot qui plonge dans un réservoir, rempli de graisse ou silicone pour assurer un bon contact thermique et refroidit par effet Peltier . Ce réservoir est régulé en température à une précision de l'ordre de 1/100ème de degré (ceci en effectuant un asservissement sur le courant qui circule dans la plaquette à effet Peltier) . Ceci permet de maintenir une pression constante à l'intérieur de la cellule (*). La température du point froid se situe vers 18°C . La cavité est fermée par deux miroirs multidiélectriques dont le coefficient de réflexion est maximum vers 633 nm. Le premier miroir de la cavité est un miroir plan totalement réfléchissant (transmission résiduelle de l'ordre de 0,04%) ; les tubes LT_2 les plus récents ne possèdent qu'une fenêtre à angle de Brewster et ce miroir est, en fait, solidaire de ces tubes. L'autre miroir (Spectra Physics) est sphérique de rayon R = 60 cm et à 0,9% de transmission. Ce miroir de $\emptyset$ 7,75 mm est monté sur une céramique piezoélectrique percée (Quartz et Silice) et composée d'un empilement de 10 rondelles (en P_4.68). Sur deux de ces rondelles on applique une tension alternative modulée à 5,6 kHz permettant de moduler la fréquence du laser ; les autres rondelles servent à corriger la longueur de la cavité laser, en boucle fermée, lorsque la fréquence du laser est asservie sur le pic d'absorption saturée (voir paragraphe 3 , électronique d'asservissement). La puissance disponible est de l'ordre de 250 µWatt.

b) Laser à 612 nm .

Parmi les transitions visibles du néon donnant lieu à un effet laser, celle à λ = 633 nm a le gain le plus fort. D'autres transitions visibles peuvent toutefois être observées mais elles nécessitent l'introduction, dans la cavité laser, d'un élément dispersif (par exemple un prisme)

(*) Entre -10°C et 50°C cette pression de vapeur saturante peut être représentée par la relation : $\log P = 1{,}5634 + 0{,}036927\ t$ [70] où P est exprimé en torr et t en °C . On a pour 18°C : P ≃ 170 mtorr

afin de sélectionner la longueur d'onde laser désirée en empêcher l'oscillation à $\lambda = 633$ nm . Les autres transitions que nous avons pu mettre en évidence au cours de divers essais préliminaires effectués à l'aide d'un tube amplificateur du type LT_2 sont les suivantes :

$$3S_2 - 2P_2 \quad \text{à} \quad \lambda = 640{,}3 \text{ nm} \ ,$$

$$3S_2 - 2P_5 \quad \text{à} \quad \lambda = 612{,}0 \text{ nm} \ .$$

Toutefois le gain des tubes LT_2 étant trop faible, l'oscillation ne pouvait être mise en évidence qu'avec des miroirs totalement réfléchissants et la puissance émise ne dépassait pas quelques µWatts .

Nous avons donc été amené à utiliser un tube amplificateur plus puissant (d'abord le modèle LT_7 de CW Radiation, puis le modèle 120 de Spectra Physics).

Une étude parallèle menée par J. S. BENNETT et P. CEREZ [36] a permis de mettre en évidence la coïncidence entre la raie à $\lambda = 612$ nm et celle de l'iode 47 R (9-2) et de déterminer les conditions optimales pour asservir la fréquence du laser sur une composante hyperfine de cette raie.

Le niveau v" étant égal à 2, la transition est très absorbante et il n'est pas nécessaire de chauffer la cellule à iode ; d'autre part, pour diminuer l'absorption, la température du point froid doit être voisine de 0°C . L'absorption étant très forte, l'oscillation à mode unique ne pose aucun problème ; celui-ci peut être balayé sur plus de 1 GHz et les 21 composantes hyperfines de cette raie peuvent être observées (voir Fig. (21), Chapitre VI).

Le nombre d'ondes de la fréquence d'un tel laser asservie sur la composante "i" a été mesurée au BIPM [29] . On a :

$$\sigma_i = 16340{,}65805(1) \text{ cm}^{-1} \ .$$

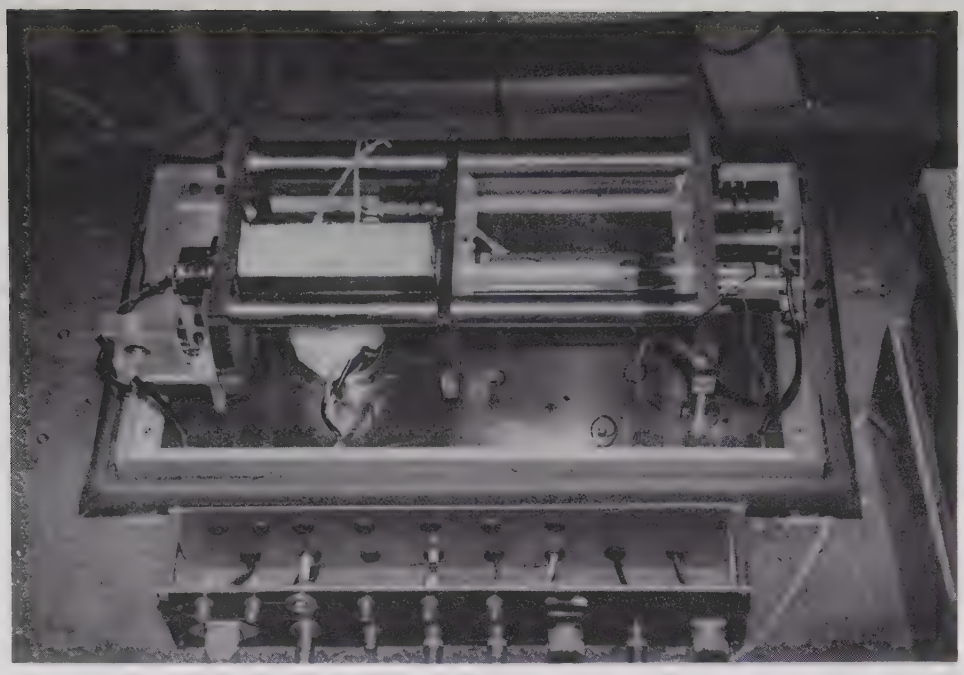


Figure 2 - a : Laser He-Ne stabilisé sur l'iode à $\lambda = 633$ nm comprenant un tube CW radiation (type LT_2).

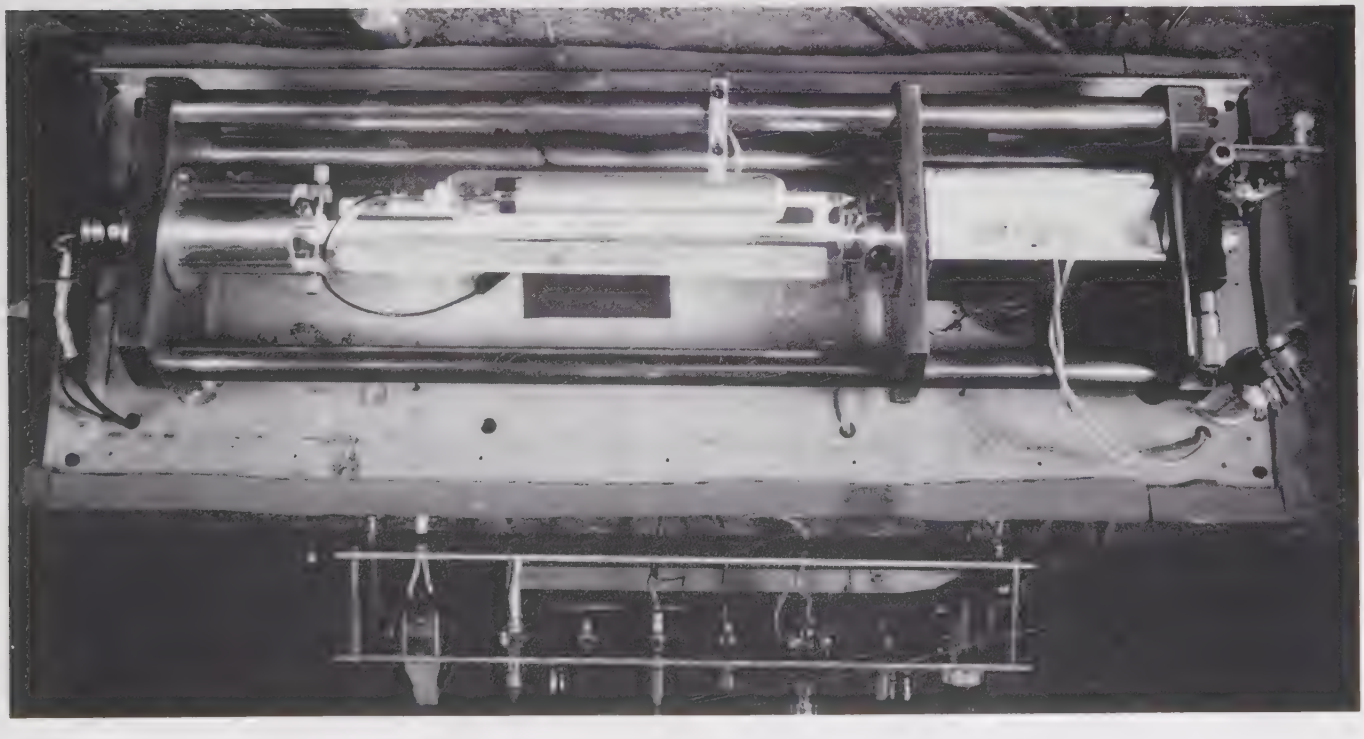


Figure 2 - b : Laser He-Ne stabilisé sur l'iode à $\lambda = 612$ nm comprenant un tube Spectra-Physics (modèle 120, 5 mw).

Sur ces photos on distingue la cellule à iode intra-cavité.

Le schéma de la cavité est représenté sur la Fig. 1-b . Celle-ci est de l'ordre de 63 cm ; la longueur de la cellule est égale à 50 mm. La cavité est fermée par deux miroirs sphériques identiques de rayon de courbure R = 60 cm et de coefficient de réflexion maximum (transmission résiduelle T = 0,04%) centrée vers 633 nm (modèle Spectra Physics).

La transmission résiduelle à 612 nm nous permet de disposer de deux faisceaux dont l'intensité est de l'ordre de 350 µWatt . Le prisme sélectionnant la longueur d'onde est en silice et l'angle au sommet a été calculé de telle sorte que les faces de ce prisme soit à angle de Brewster dans la cavité. Les autres éléments de la cavité : refroidisseur à effet Peltier, céramique piezoélectrique ... sont identiques à ceux utilisés dans le laser fonctionnant à 633 nm.

D'autres transitions donnant lieu à un effet laser ont pu être mises en évidence avec l'appareil que nous avons construit :

- $3S_2 - 2P_1$ à $\lambda = 730,7$ nm .

La raie d'iode 162 P (2-10) qui se trouve dans le profil Doppler de cette transition est très peu absorbante (v" = 10) et un seul pic d'absorption saturée a pu être observé en chauffant la cellule vers 300°C. La puissance disponible sur cette raie est de l'ordre de 200 µWatt mais pourrait être augmentée en utilisant des miroirs diélectriques de coefficient de réflexion mieux centré.

- $3S_2 - 2P_2$ à $\lambda = 640,3$ nm .

Là encore il n'existe pas de raie d'iode très absorbante permettant d'asservir efficacement la fréquence du laser [36].

- $3S_2 - 2P_3$ (à $\lambda = 635,4$ nm) et $3S_2 - 2P_5$ (à $\lambda = 629,5$ nm) qui oscillent simultanément avec la transition à 633 nm .

La Figure 2 représente une photographie des deux types de lasers que nous avons construits.

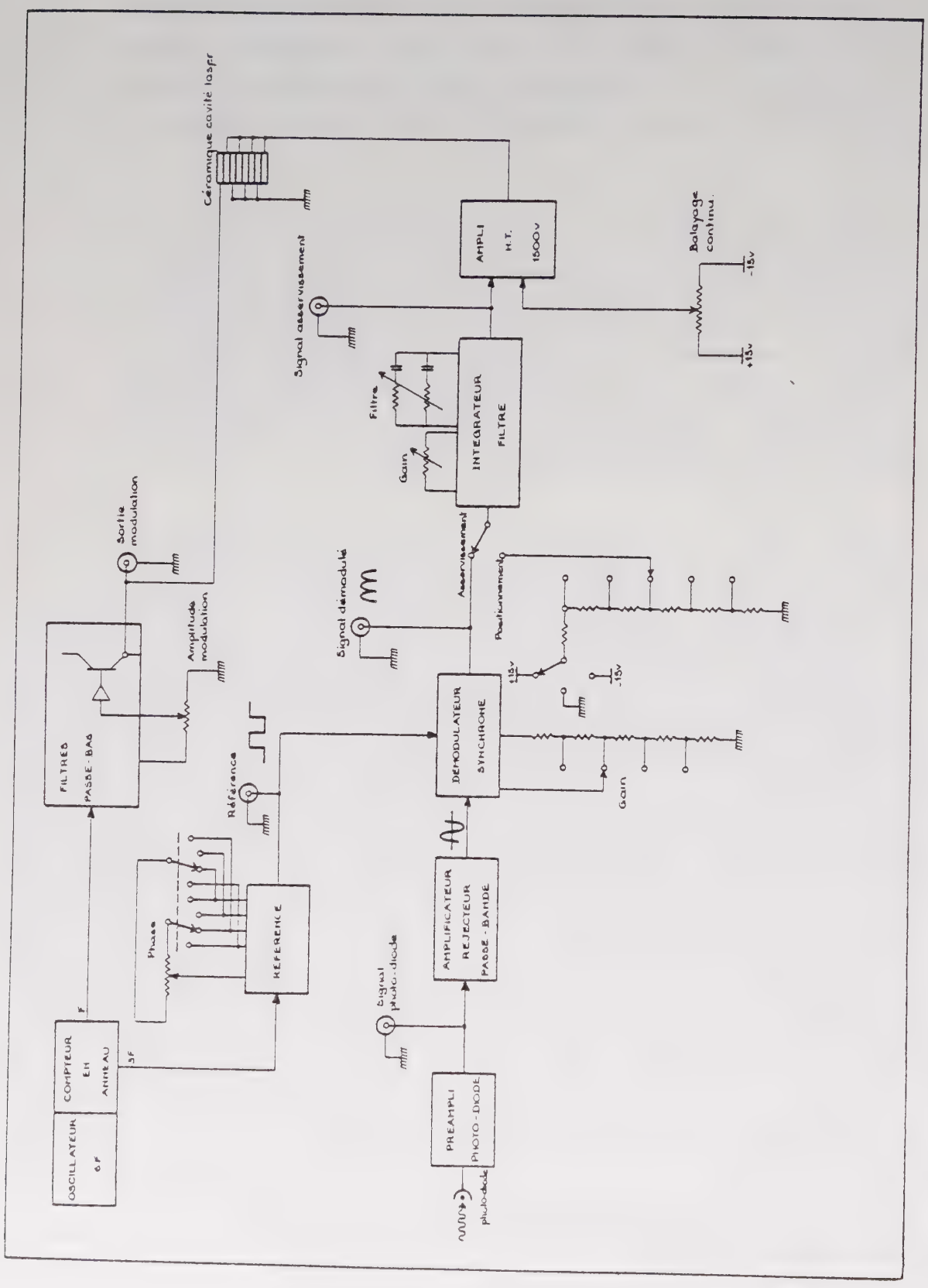


Figure 3 : Schéma synoptique de l'électronique d'asservissement des lasers He-Ne.

3 - ELECTRONIQUE D'ASSERVISSEMENT.

La Figure 3 représente un bloc diagramme de l'électronique d'asservissement identique pour les deux types de laser .

Une modulation F = 5,6 kHz est appliquée sur deux rondelles de la céramique piezoélectrique. L'amplitude de cette modulation est ajustée de telle sorte qu'elle corresponde à une modulation de la fréquence du laser de l'ordre de grandeur de la largeur à mi-hauteur du pic d'absorption saturée, soit 3 à 4 MHz environ. Le signal recueilli par la photodiode est filtré et démodulé à la fréquence triple de la fréquence de modulation par une détection synchrone, ce qui permet d'éliminer l'influence du fond Doppler. Ce signal démodulé fournit le signal d'erreur à l'entrée d'un intégrateur suivi d'un amplificateur haute tension. La sortie de cet amplificateur est appliquée aux bornes de la céramique ; en boucle fermée, la longueur de la cavité laser est donc compensée de telle sorte que la fréquence du laser reste asservie sur le pic d'absorption saturée choisi.

ANNEXE III

Metrologia 17, 77–79 (1981)

metrologia

© by Springer-Verlag 1981

Absolute Determination of the Wavelengths of the Sodium D_1 and D_2 Lines by Using a CW Tunable Dye Laser Stabilized on Iodine

P. Juncar[1], J. Pinard[1], J. Hamon[2], and A. Chartier[2]

[1] Laboratoire Aimé Cotton*, C.N.R.S. II, Bâtiment 505, F-91405 Orsay Cedex, France
[2] Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France

Received: April 1, 1981

Abstract

Coincidences between the sodium D_1 and D_2 lines and two corresponding $^{127}I_2$ lines have permitted the determination of the absolute wavelengths of the hyperfine components of the sodium D lines by using a cw tunable dye laser. The laser frequency, locked in turn on the "o" and "n" hyperfine components of the P 114 (14-1) and P 38 (15-2) iodine lines, was measured at B.I.P.M. on the Michelson interferometer. The values of the wavelengths of these iodine lines are respectively: 589 756 661.7 fm and 589 158 022.0 fm.

Introduction

Coincidences between iodine lines and plasma-tube laser lines have been widely investigated [1–3]. The main goal of these experiments was the realization of new wavelength standards using laser lines having frequencies locked to hyperfine transitions of iodine 127 by a saturated absorption technique. This method permits a very accurate stabilization of the wavelength and gives a precision generally better than one part in 10^9 [4, 5]. This kind of experiment is of great interest for many applications in interferometry, for example, in length measurements which use the well-known method of excess fractions requiring several reference wavelengths. It is worth remarking that iodine provides many narrow absorption lines covering the whole of the visible spectrum and thus is very well adapted to the stabilization of the dye laser frequency with a high accuracy. Although the number of absorption lines makes it difficult to localise, precisely and reproducibly, any particular line, accidental coincidences between some of these lines and well-known emission lines help to alleviate this problem and allow the locking of a dye-laser frequency to a well-determined value without too much difficulty.

In this paper we report the observation of such coincidences between the sodium D_1 and D_2 lines and the P 114 (14-1) and P 38 (15-2) iodine lines, respectively. The identification of these lines was made with the help of an iodine atlas [6, 7]. In the first part, we describe briefly a preliminary experiment which has permitted us to study simultaneously the hyperfine structure of iodine and sodium lines observed by using a single-mode cw tunable dye laser and a saturated-absorption-spectroscopy arrangement. The second part describes the absolute measurements of the frequency of the dye laser locked to one hyperfine component of each of the iodine lines studied.

The experimental arrangements

We used a commercial Coherent Radiation 599/21 tunable dye laser pumped by a Spectra-Physics 164 argon-ion laser. The pump power was about 2.5 W and the dye laser output was achieved at a power of about 80 mW single mode at 590 nm. As shown in Fig. 1, the hyperfine structures of the iodine and the sodium lines were obtained by two parallel saturated-absorption-spectroscopy arrangements in two external cells

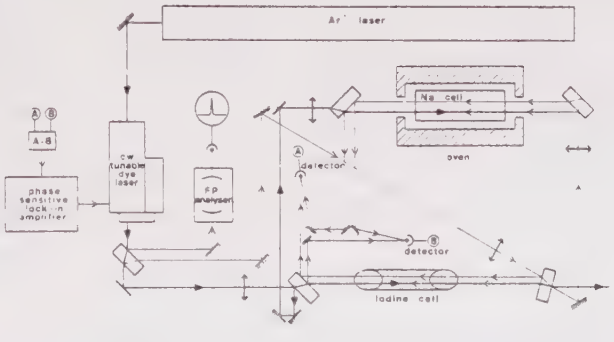


Fig. 1. Scheme of the double-saturated-absorption arrangement which permits one to record simultaneously iodine and sodium hyperfine structures

* Laboratoire associé à l'Université Paris-Sud

0026-1394/81/0017/0077/$01.00

[8, 9]. The 100 mm long iodine cell was at room temperature (20 °C). Two probe beams crossed each cell and were detected by UDT 450 Type detectors; one of these beams crossed the saturating beam and the saturated absorption signal was obtained from the difference between these two signals. This allowed us to eliminate power instabilities of the dye laser and the Doppler-broadened absorption profile in the cells. In order to stabilize the laser frequency on one definite hyperfine component and consequently generate an error signal, we modulated the laser frequency and used third-derivative lock-in detection such as is regularly used in frequency-stabilized plasma-tube lasers, Fig. 2a, b.

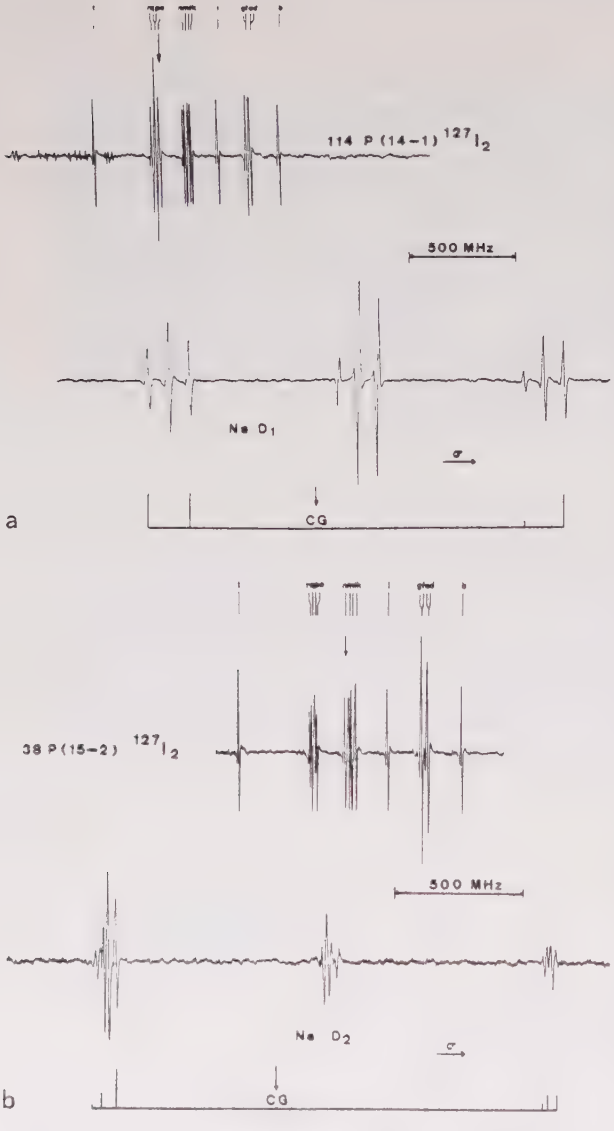


Fig. 2a. Simultaneous recording of the hyperfine structures of the sodium D_1 and I_2 P 114 (14-1) lines by making a third-derivative phase-sensitive detection; abscissae proportional to wave-number, σ. b Similar recording for the sodium D_2 and I_2 P 38 (15-2) lines

Measurements

In order to measure the relative position of the hyperfine components of the sodium D lines with respect to one component of iodine, and then to deduce the position of their center of gravity, we assumed a quasi-linear scanning of the dye-laser frequency and used, for scale calibration, the well-known value of the hyperfine splitting of the ground state of sodium (1771.63 MHz). The error in such a calibration is reduced if the difference between the measured iodine component and one of the sodium components is small; we chose, therefore, the component "o" of the P 114 (14-1) I_2 line which has been found at 42 MHz away from the crossover line located in the middle of the structure of the red sodium D_1 components ($F=2 \rightarrow F'=1$ and $F=2 \rightarrow F'=2$) and the component "n" of the P 38 (15-2) I_2 line which has been found at 56 MHz away from the crossover line located in the middle of the structure of the sodium D_2 line ($F=2 \rightarrow F'=2$ and $F=1 \rightarrow F'=2$). The absolute measurements of the I_2 lines were made at B.I.P.M., using the Michelson interferometer which has, together with the measurement method, already been widely described [10, 11]. The reference used was a He-Ne laser stabilized on the peak "d" of the R 127 (11-5) of the 127 iodine line: $\lambda = 632\,991\,178.3$ fm; this wavelength was calculated from the value of the "i" peak recommended by the C.C.D.M.[1] in 1973. The mean value of four determinations of the wavelength of the "o" iodine component and six determinations of the wavelength of the "n" iodine component are, respectively:

589 756 661.7 fm ± 0.2 fm and 589 158 022.0 fm ± 0.45 fm, the quoted uncertainty being one standard deviation.

We have thus determined the position of the center of gravity of the sodium D_1 and D_2 lines which are, respectively:

589 755 814.7 fm ± 1.5 fm and 589 158 326.4 fm ± 1.5 fm.

Conclusion

We have reported two new absolute measurements of the wavelength given by a cw tunable dye laser tuned to iodine hyperfine components located by their coincidences with the sodium D emission lines. The difference between the two corresponding wavenumbers is:

$\Delta\sigma = 17.22903\ (2)\ \text{cm}^{-1}$ ($\Delta\lambda = 0.580416$ mm).

This is a very interesting value for length measurements using the method of excess fractions (in particular for measurements of length about 1 m) such as are needed for the calibration of the path differences of the interferometers used in the sigmameter [12, 13]. Secondly,

[1] Comité Consultatif pour la Définition du Mètre, one of the technical groups advising the Comité International des Poids et Mesures (C.I.P.M.)

we have pointed out that a cw tunable dye laser can be used as a source of several reference wavelengths: in particular, by using an appropriate mixing of Rd 6G and Rd B dye, single-mode operation can be obtained inside a spectral range from 580 nm to 650 nm, at the wavelengths reported in this paper as well as those given by a He-Ne laser working at nominally 612 or 633 nm.

Acknowledgements. The authors would thank J.-M. Chartier for his efficacious assistance concerning the installation of the reference He-Ne laser stabilized on iodine.

References

1. G.R. Hanes, C.R. Dahlstrom: Appl. Phys. Lett. **14**, 362 (1969)
2. A.J. Wallard: J. Phys. E **5**, 926 (1972)
3. S.J. Bennett, P. Cerez: Opt. Commun. **25**, 343 (1978)
4. W.G. Schweitzer, E.G. Kessler, R.D. Deslattes, H.P. Layer, J.R. Whetstone: Appl. Opt. **12**, 2927 (1973)
5. S.J. Bennett, P. Cerez, J. Hamon, A. Chartier: Metrologia **15**, 125 (1979)
6. S. Gerstenkorn, P. Luc: Atlas du Spectre d'Absorption de la Molécule d'Iode entre 14800 et 20000 cm^{-1}. Paris: Editions du C.N.R.S. 1978
7. P. Luc: J. Mol. Spectrosc. **80**, 41 (1980)
8. P.H. Lee, M.L. Skolnick: Appl. Phys. Lett. **10**, 303 (1967)
9. R.L. Barger, J.L. Hall: Phys. Rev. Lett. **22**, 408 (1969)
10. W.R.C. Rowley, J. Hamon: Rev. Opt. **10**, 519 (1963)
11. P. Giacomo: Proc. Fourth Int. Conf. on Atom. Mass. and Fund. Const., p. 348, London: Plenum Press (1972)
12. P. Juncar, J. Pinard: Opt. Commun. **14**, 478 (1975)
13. P. Juncar, J. Pinard: (to be published)

Deuxième Partie

APPLICATION DU SIGMAMETRE A L'ETUDE SPECTROSCOPIQUE DES RAIES D DE SERIES D'ISOTOPES RADIOACTIFS D'ALCALINS

I - INTRODUCTION.

Comme nous l'avons signalé dans l'introduction générale, les expériences de spectroscopie atomique que nous allons décrire dans cette seconde partie ont été réalisées, au C.E.R.N., en collaboration avec une équipe du Laboratoire René Bernas.

Le but de ces expériences est de déduire des mesures relatives de fréquence, effectuées sur les raies D_1 (transition $^2S_{1/2} - {}^2P_{1/2}$) et D_2 (transition $^2S_{1/2} - {}^2P_{3/2}$) de longues séries d'isotopes radioactifs d'alcalins, des paramètres nucléaires :

- le spin I est mesuré directement par résonance magnétique ;

- le moment magnétique μ_I et le moment quadrupolaire Q sont déduits des mesures de structures hyperfines ;

- la variation du rayon carré moyen $\delta\langle r^2\rangle$ de la distribution des charges dans le noyau est déduite des mesures de déplacement isotopique.

Q et $\delta\langle r^2\rangle$ sont liés à la déformation du noyau ; si de telles mesures ont d'abord été faites sur des noyaux stables, leur extension aux isotopes radioactifs apportent ainsi d'autres renseignements qui montrent comment l'édifice nucléaire se construit par addition successive de nucléons.

Cependant l'influence de ces paramètres sur les fréquences des transitions atomiques est extrêmement faible et nécessite, pour être détectée, des mesures précises à environ 1 MHz.

Le Chapitre II sera consacré à des rappels généraux de la méthode expérimentale dont on trouvera une description plus complète dans la thèse de J. L. VIALLE [15]. Nous commencerons par présenter les niveaux d'énergie des transitions de résonance des alcalins et leur comportement dans un champ magnétique ; puis nous décrirons le principe de la méthode et, enfin, le dispositif expérimental utilisant un jet atomique thermique.

Dans le Chapitre III, nous exposerons les résultats obtenus dans le cas du francium qui constitue un cas particulier dans la mesure où aucune transition optique n'ayant pu être observée auparavant, il a fallu modifier quelque peu le montage expérimental initialement prévu pour une étude à très haute résolution des raies D des alcalins ; nous décrirons donc l'expérience préliminaire à basse résolution, que nous avons réalisée afin de pouvoir localiser et mesurer la longueur d'onde de la raie de résonance D_2 , puis l'étude à haute résolution de cette transition.

Le dernier chapitre sera consacré à l'adaptation d'une méthode de double résonance à notre schéma expérimental dans le but de mesurer les facteurs de couplage quadrupolaire avec une plus grande précision que celle obtenue par la méthode optique précédente ; les expériences ont été faites sur une série d'isotopes de sodium.

^{x}Na

$I \geqslant 3/2$

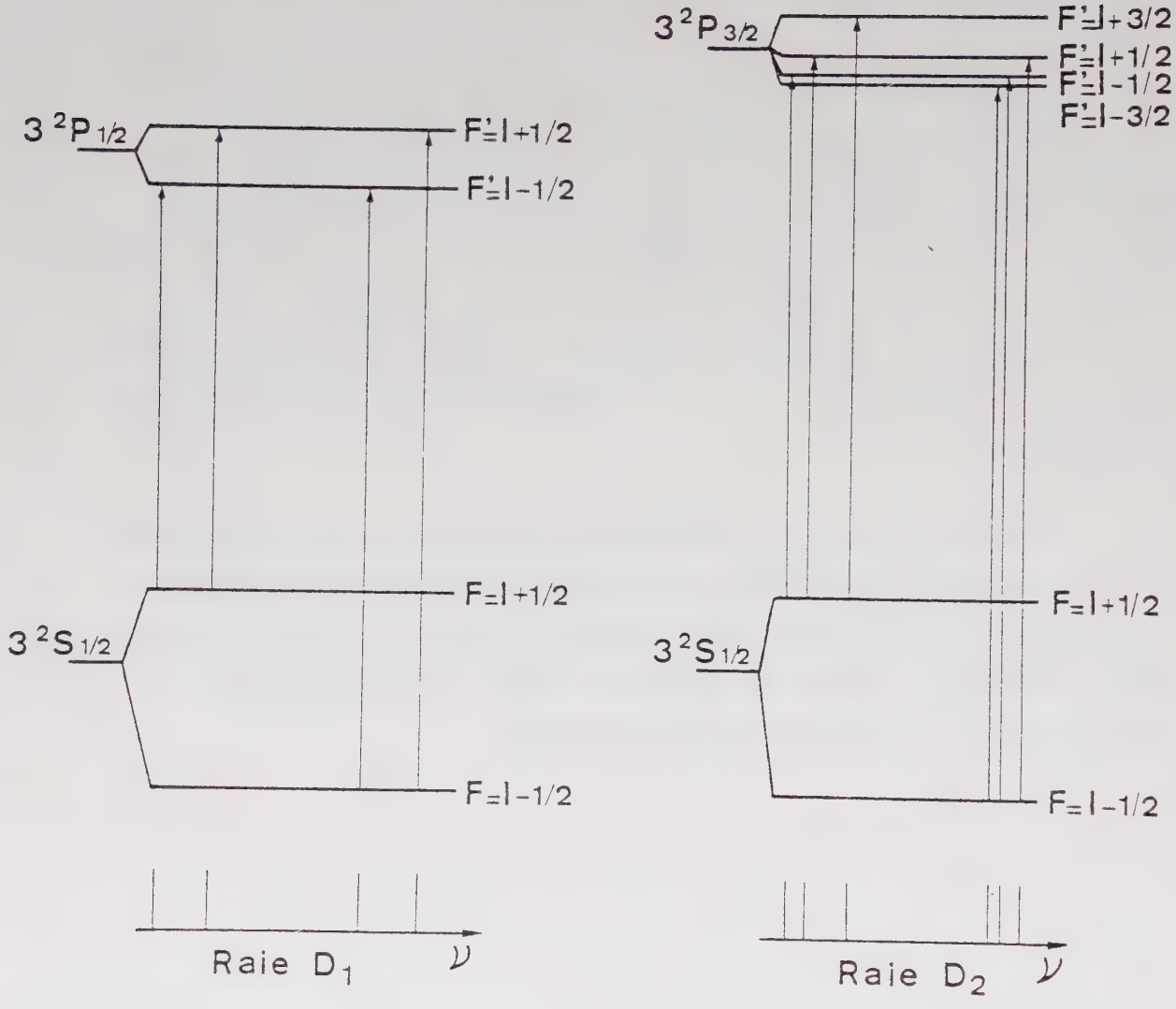


Figure 1

Diagramme des niveaux d'énergie étudiés.
Les intensités relatives et les écarts relatifs des composantes dépendent de I et ne sont pas représentés sur la figure.

II - RAPPELS GENERAUX DE LA METHODE EXPERIMENTALE.

A - NIVEAUX D'ENERGIE ET STRUCTURES HYPERFINES.

1) Niveaux d'énergie des alcalins.

Tous les atomes alcalins présentent la même configuration spectrale : le niveau fondamental est le niveau $^2S_{1/2}$ ($L=0$, $S=1/2$, $J=1/2$) qui se dédouble (pour $I\neq 0$) en 2 niveaux hyperfins par couplage entre J et le spin I du noyau, donnant $F = I+1/2$ et $F = I-1/2$, Figure (1) . Pour $I=0$ on obtient un seul niveau $F=1/2$. A la température du jet thermique (dans nos expériences, la température du four est de 2000°K environ) seuls ces deux niveaux hyperfins sont peuplés thermiquement suivant leur poids statistique respectif . Les deux niveaux excités de structure fine $^2P_{1/2}$ ($L=1$, $S=1/2$, $J=1/2$) et $^2P_{3/2}$ ($L=1$, $S=1/2$, $J=3/2$) se décomposent de la même façon en niveaux hyperfins par couplage entre J et I (Fig. (1). Ces deux niveaux excités ne sont pas peuplés thermiquement. On remarque que les quatre transitions hyperfines de la raie D_1 ($^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{1/2}$) donnent lieu à un pompage optique hyperfin ; l'accord de la fréquence lumineuse sur une transition vide le niveau hyperfin de départ au profit de l'autre niveau du fondamental. Il en est de même pour la plupart des transitions hyperfines composant la raie D_2 ($^2S_{1/2} - {}^2P_{3/2}$) ; par contre , les deux transitions

$(^2S_{1/2}\ (F = I+1/2) \rightarrow {}^2P_{3/2}\ (F' = I+3/2))$

et $(^2S_{1/2}\ (F = I-1/2) \rightarrow {}^2P_{3/2}\ (F' = I-3/2))$

ne donnent lieu à aucun pompage optique hyperfin, les niveaux $(F' = I+3/2)$ et $(F' = I-3/2)$ ne pouvant se désexciter que sur leur niveau de départ respectif $(F = I+1/2)$ et $(F = I-1/2)$.

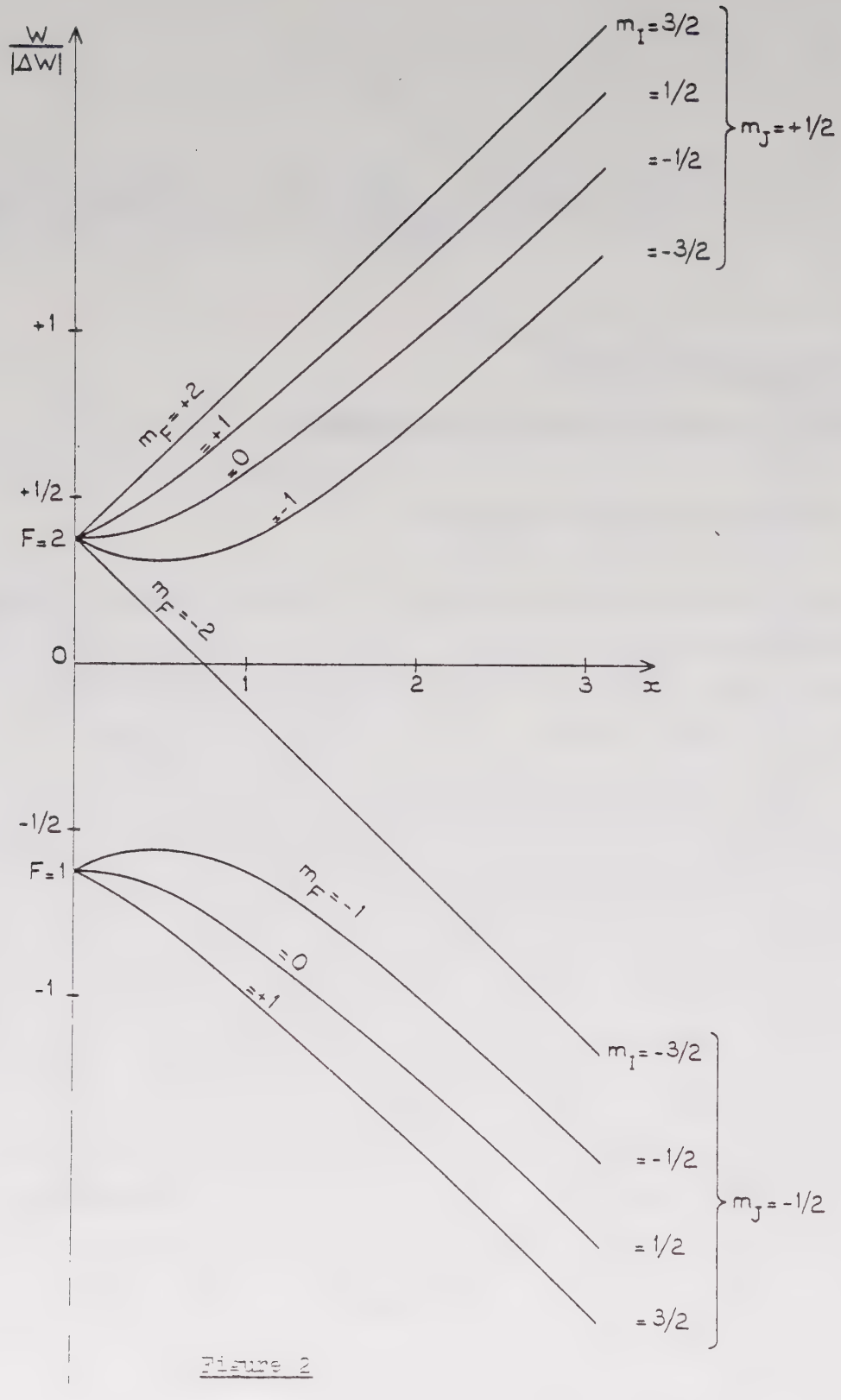


Figure 2

Variation de l'énergie W des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental en fonction du champ magnétique $x = \frac{(-\mu_J/J + \mu_I/I)B}{\Delta W}$ pour un spin nucléaire $I=3/2$ et un moment magnétique nucléaire $\mu_I > 0$ (cas de ^{23}Na).

2) Atomes alcalins dans un champ magnétique ; l'effet Zeeman hyperfin.

La Figure (2) montre schématiquement l'allure des sous-niveaux Zeeman hyperfins en champ magnétique réduit croissant (*) pour un spin $I=3/2$ et un moment magnétique $\mu_I > 0$. Si les atomes voient un champ magnétique lentement variable, ils suivent adiabatiquement les niveaux d'énergie Zeeman du champ nul (ou faible) au champ fort : le couplage entre I et J en champ faible se modifie graduellement dû à l'interaction magnétique. En champ magnétique nul (ou faible) $\vec{I} + \vec{J} = \vec{F}$ et les sous-niveaux Zeeman sont caractérisés par $|F, m_F\rangle$.

En champ magnétique intermédiaire $(x \simeq 1)$, c'est-à-dire lorsque l'écart Zeeman dû au champ magnétique est du même ordre que la structure hyperfine, $\vec{I}$ et $\vec{J}$ sont partiellement découplés ; l'effet Zeeman dans ce cas a éré calculé [ ] et exprimé par la formule analytique de Breit-Rabi. En champ magnétique fort $(x > 1)$, c'est-à-dire lorsque l'écart Zeeman dû au champ magnétique est plus grand que la structure hyperfine, $\vec{J}$ et $\vec{I}$ sont découplés et précessent indépendamment autour du champ magnétique. Les sous-niveaux Zeeman se groupent en deux faisceaux correspondant à des valeurs de m_J égales à $+1/2$ et $-1/2$ avec $(2I+1)$ sous-niveaux dans chaque faisceau.

3) Sélection des atomes par un champ magnétique inhomogène.

Avant de décrire le principe de la méthode, examinons le comportement des atomes alcalins dans l'entrefer d'un aimant hexapolaire : un

(*) Ce champ magnétique réduit est déterminé, selon la formule de Breit-Rabi [47] , en tenant compte de la valeur de la structure hyperfine du niveau fondamental $\Delta\nu_{HFS}$:

on a : $$x = \frac{(g_J \mu_B + g_I \mu_N)}{h \cdot \Delta\nu_{HFS}} H \simeq \frac{2\mu_B H}{h \Delta\nu_{HFS}} ,$$

où μ_B est le magnéton de Bohr et h la constante de Planck.

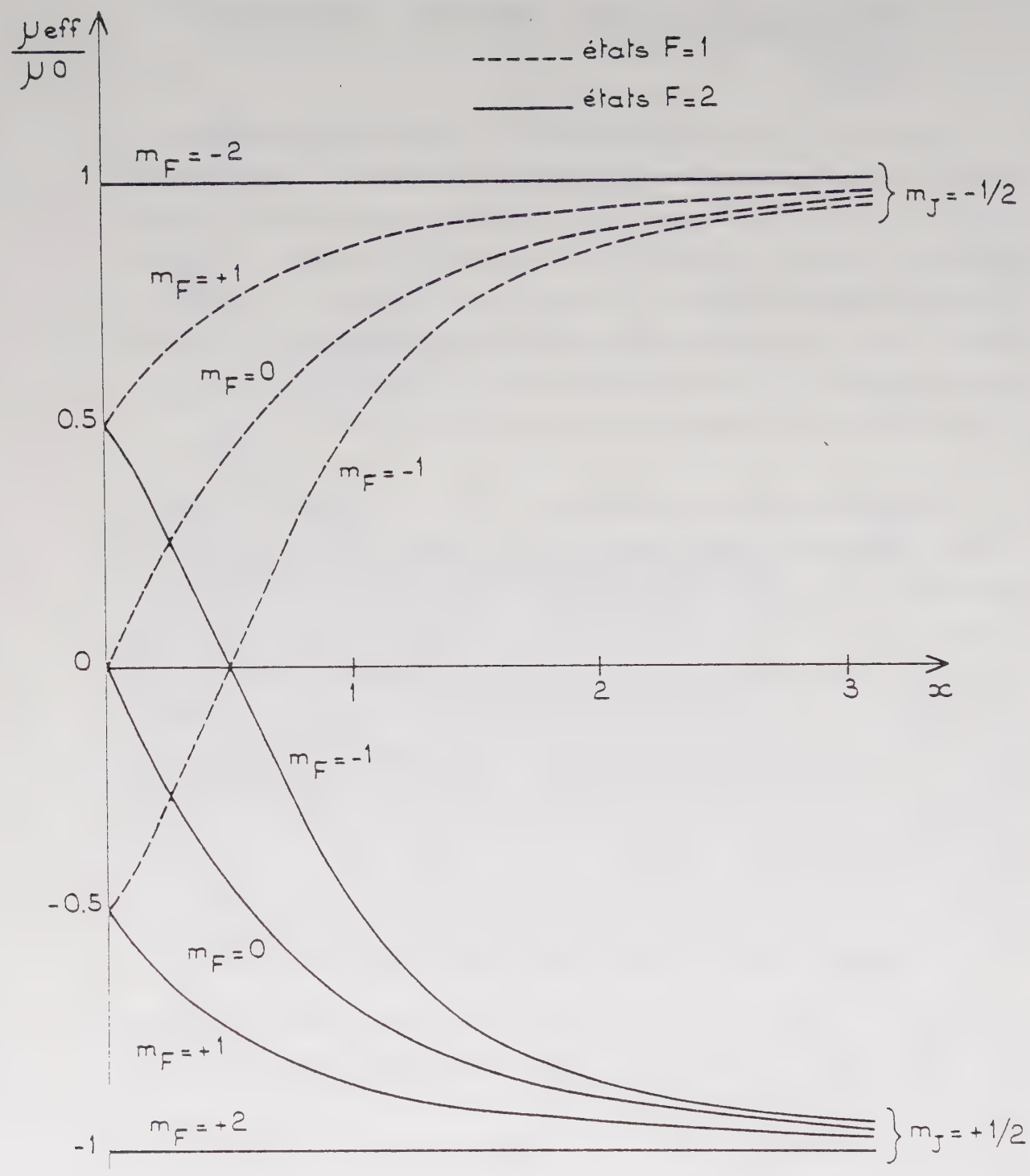


Figure 7

Moment magnétique effectif μ_{eff} des sous-niveaux magnétiques de l'état fondamental de l'isotope ^{23}Na ($I=3/2$ $\mu_I > 0$) en fonction du champ magnétique.

tel aimant est, en effet, utilisé dans notre montage expérimental ; comme nous le verrons, il permet d'analyser le moment magnétique effectif de l'état fondamental des atomes alcalins. La Figure (3) représente, en fonction du champ magnétique réduit $\left(x = \frac{(-\mu_J/J + \mu_I/I)H}{\Delta W} \right)$, la variation du moment magnétique de l'atome dans chacun des sous-niveaux Zeeman hyperfin. Dû au couplage entre $\vec{I}$ et $\vec{J}$, ce moment magnétique dépend du champ H , sauf pour les niveaux de m_F extrêmes : $m_F = \pm(I+1/2)$ où $\mu = \pm\mu_B$ (Fig. (3)). Pour les autres sous-niveaux, μ tend vers la valeur limite μ_B en champ fort. De ce fait, la force qui agit sur ces moments magnétiques, dans un champ magnétique inhomogène, n'est simple qu'en champ fort où $\mu = \pm\mu_B$ pour tous les sous-niveaux. Le cas général des champs magnétiques inhomogènes est traité dans [15] ; nous nous bornerons ici au cas du champ produit dans l'entrefer d'un aimant hexapolaire

$$H_{(r)} = \frac{r^2}{R^2} H_R$$

où R est le rayon de l'ouverture de l'aimant,
r est la distance d'un point à l'axe,
H_R est la valeur du champ sur les pôles.

La force exercée sur les atomes est alors radiale et vaut :

$$F = \pm\mu_0 \frac{\partial H}{\partial r} = \pm(2\mu_0 H_R/R^2) \quad .$$

On sait que dans ce cas il y a deux solutions à l'équation du mouvement des atomes suivant le signe de μ . Les atomes avec $m_J = +1/2$ ont un moment magnétique positif , donc une trajectoire sinusoïdale, les atomes avec $m_J = -1/2$ ont un moment magnétique négatif et une trajectoire hyperbolique. Les trajectoires sinusoïdales peuvent converger sur l'axe, celles hyperboliques sont défléchies hors de l'axe. On peut également interpréter cet effet de la manière suivante : des atomes dans un champ inhomogène subissant une force qui a tendance à ramener l'énergie du système à sa valeur la plus faible. Dans le cas d'un aimant hexapolaire

le champ magnétique est nul sur l'axe ; les atomes de moment magnétique effectif $m_J = +1/2$ vont donc se regrouper sur cet axe où leur énergie est minimum, voir Fig. (2), il y a focalisation ; au contraire, les atomes de moment magnétique effectif $m_J = -1/2$ vont vers les régions de champ fort et sont donc défocalisées. Nous allons voir que c'est précisément cette propriété associée au pompage optique que l'on utilise comme mécanisme de détection des résonances optiques.

En fait, la focalisation des atomes de moment magnétique effectif $m_J = +1/2$ dépend de divers paramètres comme la vitesse du jet d'atomes qui traversent l'aimant hexapolaire, l'inclinaison de leur trajectoire sur l'axe, des propriétés magnétiques de l'hexapole,... . Afin que le point de focalisation soit le mieux défini possible, une optimisation de tous ces paramètres est nécessaire [15].

B - PRINCIPE DE LA METHODE EXPERIMENTALE.

1) Schéma général de l'expérience.

L'ensemble expérimental est représenté schématiquement sur la Fig. (4). Son principe sera rappelé en examinant brièvement chaque partie du dispositif ; pour une description plus complète de chacun des éléments (cible, four, aimant hexapolaire, tec...) on pourra se rapporter aux références [15][16]. Nous donnerons toutefois quelques détails supplémentaires sur la partie de l'expérience qui concerne le laser et l'asservissement de sa fréquence au paragraphe c).

Nous allons donc décrire successivement :

- le four contenant une cible bombardée par le faisceau de protons issus de l'accélérateur ;

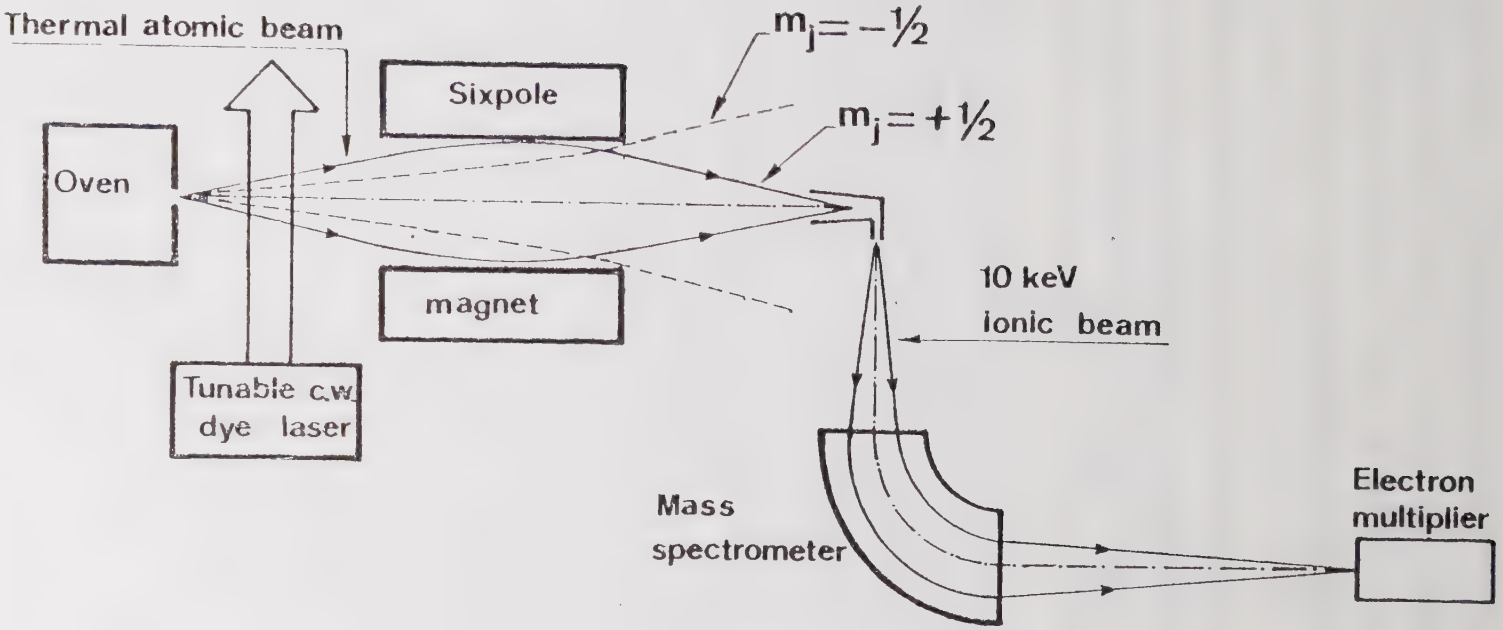


Figure 4 : Schéma général de l'expérience.

- la zone d'interaction dans laquelle les atomes, sortant du four sous forme de jet, interagissent avec la lumière d'un laser dont le faisceau est perpendiculaire au jet ;

- l'aimant hexapolaire qui sélectionne les atomes dont le moment magnétique effectif est égal à +1/2 ;

- le séparateur de masse (précédé d'un ioniseur) ;

- et, enfin, les détecteurs.

2) Production du jet d'atomes radioactifs.

La méthode expérimentale permettant la formation du jet thermique d'atomes radioactifs est la suivante : un faisceau de protons de plusieurs centaines de Mev (jusqu'à 20 Gev pour les expériences faites au P.S. du C.E.R.N.) bombarde une cible (d'uranium dans la plupart des expériences). Cette cible est placée dans un four étanche (en général en tantale) que l'on chauffe à environ 2000°K. Ce bombardement provoque diverses sortes de réactions suivant le type de cible utilisé en fonction des classes d'isotopes que l'on désire produire ; ces réactions se groupent en trois catégories : La fragmentation, la fission et la spallation. C'est cette dernière réaction qui est utilisée pour la production du francium à partir d'une cible de thorium ou d'uranium. Les isotopes radioactifs d'alcalins sont en général produits sous forme d'ions qui sont neutralisés dans le four et sortent sous forme de jet par l'orifice d'un tube en tantale.

3) Zone d'excitation optique.

Dans le cas de jets atomiques thermiques peu denses (faible production d'atomes radioactifs) on cherche à augmenter le nombre d'atomes collectés par les détecteurs ; ceci impose que le jet atomique soit aussi ouvert que possible. Dans une excitation optique perpendiculaire au jet (qui permet d'obtenir la résolution désirée), cette ouverture détermine la largeur Doppler résiduelle. Dans notre cas, une résolution de l'ordre

de 50 MHz est souhaitable pour l'analyse des structures hyperfines du niveau supérieur $^2P_{1/2}$; ceci entraîne une collimation de l'ordre de 40 dans les conditions de température de travail de la source ($\simeq 2000°K$).

4) Méthode de détection des transitions optiques.

La géométrie du jet étant déterminée, il reste à détecter le maximum d'atomes ayant subi l'interaction résonnante. Nous avons signalé, dans l'Introduction Générale, que la méthode que nous avons choisi porte sur la détection des atomes eux-mêmes ayant interagi avec le rayonnement laser. Nous allons voir que cette méthode est plus sensible que celles basées sur la détection de la fluorescence ; en effet dans ces méthodes :

- d'une part, l'angle solide utilisé pour collecter la lumière de fluorescence est limité alors que les atomes rayonnent dans l'espace tout entier ;

- d'autre part, nous avons vu que, lors d'une interaction résonnante, le pompage optique produit une différence de population entre les états magnétiques du niveau fondamental. Ce processus fait que chaque atome ne peut émettre qu'un nombre limité de photons.

Au lieu de subir les "effets néfastes" du pompage optique, on peut, au contraire, l'utiliser pour détecter les résonances optiques en analysant la polarisation magnétique induite sur le faisceau atomique. Classiquement, on fait passer le jet atomique à travers un champ magnétique inhomogène qui analyse l'état de polarisation magnétique du niveau $^2S_{1/2}$ [48]. Comme nous l'avons mentionné, pour notre expérience nous utilisons de préférence un aimant hexapolaire [49] qui a la propriété de focaliser les atomes dans les états $m_j = +1/2$ et de défocaliser ceux dans les états $m_j = -1/2$ (voir : A §.3). De plus, un tel aimant permet de travailler avec un jet ouvert [15].

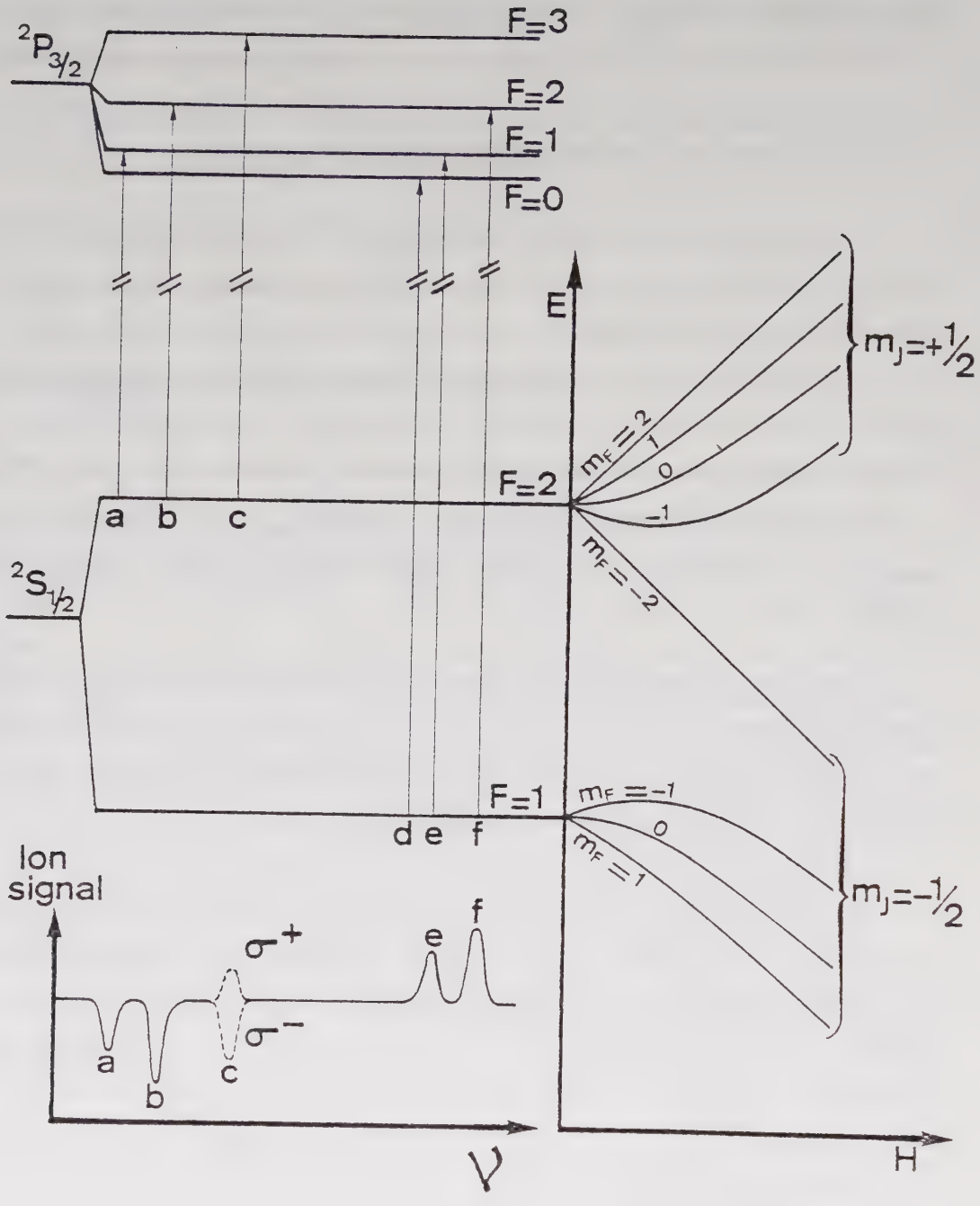


Figure 5

Signal d'ions en fonction de la fréquence du laser obtenu par pompage optique hyperfin (a,b,e,f) ou Zeeman (c).

5) Allure des signaux observés.

En l'absence d'interaction lumineuse, les deux niveaux hyperfins $F = I+1/2$ et $F = I-1/2$ du niveau fondamental $^2S_{1/2}$ sont peuplés thermiquement suivant leur poids statistique. La moitié des atomes possède une valeur de $m_J = +1/2$ et sera détectée ; par exemple, dans le cas d'un spin $I=3/2$, la dégénérescence du niveau $F = I+1/2$ est égale à 5 (celle du niveau $F = I-1/2$ est égale à 3), mais l'un des sous-niveaux hyperfins correspond à une valeur de $m_J = -1/2$ et les atomes correspondants ne seront pas détectés.

Lors de l'interaction lumineuse, le signal moyen détecté :

- baisse lorsque la fréquence lumineuse correspond aux transitions hyperfines $F = I+1/2 \rightarrow F' = I \pm 1/2$ (du niveau $^2P_{1/2}$ au $^2P_{3/2}$) qui vide, par pompage optique, les niveaux correspondant à $m_J = +1/2$;

- ou, au contraire, augmente lorsque la fréquence lumineuse correspond aux transitions hyperfines $F = I+1/2 \rightarrow F' = I \pm 1/2$ (du niveau $^2P_{1/2}$ au $^2P_{3/2}$) qui ramène les atomes sur les niveaux pour lesquels $m_J = +1/2$. (Figure 5).

Il y a deux cas particuliers :

1° La transition $^2S_{1/2}$ $(F = I+1/2 \longleftrightarrow {}^2P_{3/2}$ $(F' = I+3/2)$ ne présente pas de pompage optique hyperfin ; elle ne peut être observée qu'en lumière polarisée σ^+ ou σ^-. On définit alors un axe de quantification grâce à un petit champ magnétique statique directeur dans la zone d'interaction. Ce champ, produit à l'aide de bobines de Helmoltz, est parallèle au faisceau laser polarisé circulairement. Il est de l'ordre de 0,9 gauss, ce qui permet de découpler faiblement (environ 0,4 MHz) tous les sous-niveaux Zeeman hyperfins. Dans ce cas, par pompage optique Zeeman, les atomes initialement distribués sur tous les niveaux hyperfins sont ramenés :

- soit sur le niveau $m_F = (I+1/2)$, $\mu = \mu_B$, en lumière polarisée σ^+ et le signal observé augmente ;

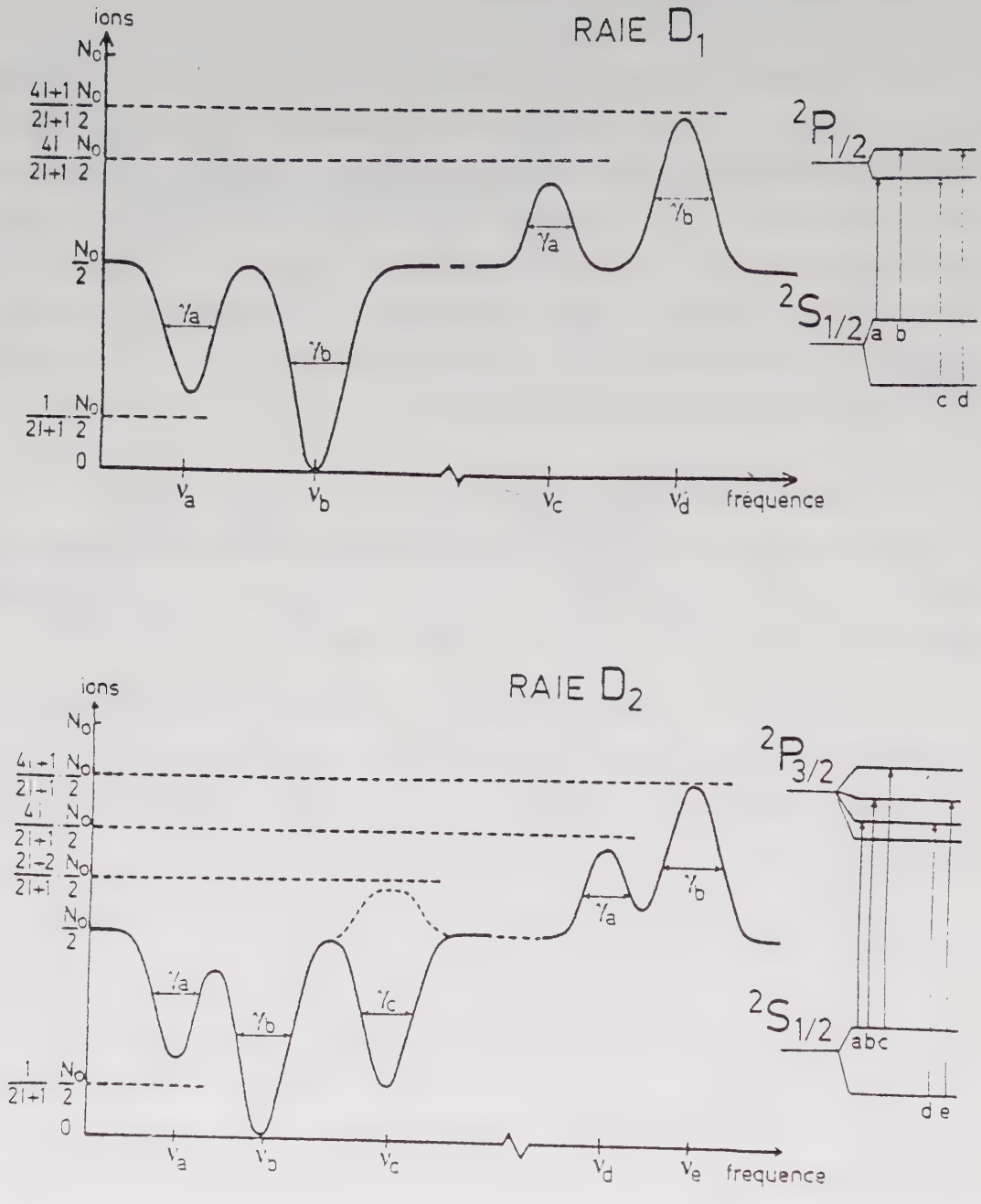


Figure 6

Intensité relative des signaux observés dans le cas des raies D_1 et D_2

- soit sur le niveau $m_F = -(I+1/2)$, $\mu = -\mu_B$, en lumière polarisée σ^- et le signal observé diminue.

2° La transition $^2S_{1/2}$ $(F = I-1/2) \longleftrightarrow {}^2P_{3/2}$ $(F = I-3/2)$, quant à elle, ne peut être observée par cette méthode car tous les sous-niveaux de $F = I-1/2$ ont un moment magnétique négatif en champ fort.

La Figure (6) montre l'allure des signaux observés pour la raie D_1 et la raie D_2 . Signalons qu'une lumière polarisée permet non seulement d'observer la transition $^2S_{1/2}$ $(F = I+1/2) \longleftrightarrow {}^2P_{3/2}$ $(F' = I+3/2)$ mais influe également sur l'intensité des signaux observés pour les autres transitions ; ainsi une lumière polarisée σ^- augmente les signaux négatifs correspondant aux transitions partant du niveau fondamental $^2S_{1/2}$ $(F = I+1/2)$ et une lumière polarisée σ^+ augmente ceux partant du niveau fondamental $^2S_{1/2}$ $(F = I-1/2)$.

Afin de bénéficier de cet avantage tout au long d'un enregistrement, le sens de la polarisation circulaire de la lumière est changé au cours du balayage de la fréquence du laser, simplement en inversant le sens du courant dans les bobines. L'intensité de chacune des composantes enregistrées dépend du spin I du noyau, c'est-à-dire du nombre de sous-niveaux Zeeman qui intervient dans le processus de pompage optique Zeeman associé au pompage optique hyperfin [15].

6) Sélection et détection des atomes.

Après avoir traversé l'aimant hexapolaire, le faisceau atomique focalisé est ionisé par ionisation de surface à l'aide d'un ioniseur en tantale ou en rhénium. Un spectromètre de masse placé en ligne permet de ne sélectionner qu'un seul isotope de l'alcalin étudié. Les ions sont acheminés, à l'aide d'une ligne de transport comprenant diverses lentilles électrostatiques focalisatrices, vers le détecteur placé dans une zone protégés des radiations. La décroissance radioactive de certains éléments piégés sur le détecteur pouvant entraîner un bruit de fond

important, la première dynode du multiplicateur d'électrons est en général constituée d'un ruban de mylar aluminé mobile ce qui permet de renouveler la surface exposée à tout moment [16] .

7) Sensibilité de la méthode.

Si l'on définit le rendement global de la méthode comme étant le rapport du nombre d'ions détectés à la sortie du jet atomique sur le nombre d'atomes produits dans la cible par unité de temps et pour un isotope donné, avec notre méthode expérimentale, celui-ci est de l'ordre de 10^{-5}. Le plus gros facteur de perte provient du fait que l'on utilise un jet atomique thermique ; les paramètres de ce jet (section de l'orifice du four, l'angle solide, ...) sont choisis de telle sorte que la résolution (limitée par l'effet Doppler résiduel) permette de résoudre, le mieux possible, les composantes hyperfines des raies D . Dans notre cas, l'angle solide est de l'ordre de 5.10^{-4} srd . Il faut rappeler que cette méthode permet de travailler sur un jet assez ouvert et, de ce fait, le rendement est supérieur aux autres méthodes utilisant deux aimants déflecteurs [48] ou d'autres types d'aimants focalisateurs [50]. L'inconvénient de l'utilisation d'un seul aimant hexapolaire focalisateur réside dans le fait que l'on travaille sur fond non nul (source de bruit supplémentaire sur les signaux détectés), ce qui est gênant dans le cas de jets peu denses ; toutefois cet inconvénient est largement compensé par le fait que l'on peut travailler en source plus étendue (orifice du four) ce qui, outre l'augmentation de l'intensité du jet, a l'avantage de réduire le temps de diffusion des atomes dans le four permettant ainsi l'étude d'isotopes très instables (durée de vie de l'ordre de quelques ms).

Les autres facteurs limitant la production d'isotopes à la sortie du four proviennent du rendement de la cible et du temps de diffusion des atomes dans le four. De plus, si l'on tient compte de la transmission du spectromètre de masse et de la ligne de transport, on trouve un rendement global en atomes de la méthode de l'ordre de 10^{-5}. Dans le cas d'isotopes très instables, il faut diviser ce rendement par un facteur

$(1 + \frac{1s}{10\tau})$ où τ (exprimé en secondes) est égal à la durée de vie de l'isotope.

Jusqu'à ce jour, l'isotope le plus instable que nous avons pu étudier par notre méthode expérimentale est le sodium de masse 31 dont la durée de vie est de 17 ms et dont la production, pour chaque impulsion du faisceau de protons de 20 Gev , est de l'ordre de 2.10^5 atomes. Le nombre d'ions détectés à la sortie est donc de l'ordre de $2.10^5.10^{-5}.0,15 = 0,3$ ion pour chaque impulsion de protons de 20 Gev.

C - LE LASER ; CONTROLE ET BALAYAGE DE LA FREQUENCE DU RAYONNEMENT.

1) Introduction.

Ces expériences ont conduit à la mise en place d'un dispositif expérimental assez complexe ayant déjà fait l'objet de nombreuses descriptions [15][16][17][18] . Nous allons simplement rappeler très brièvement quelques caractéristiques de la partie expérimentale qui concerne le laser et l'asservissement de sa fréquence à l'aide d'un sigmamètre.

2) Le laser.

Le laser à colorant continu monomode et accordable est un modèle commercial (CR 599/21 de Coherent) pompé par un laser à krypton ionisé (CR 3000 K) ou à argon ionisé (CR 12). Le colorant et la longueur d'onde de pompe utilisés varient en fonction de l'alcalin et de la transition étudiée ; nous avons rassemblé tous les cas examinés sur le Tableau (1).

Le laser à colorant possède son propre système d'asservissement permettant, entre autre, de réduire les fluctuations de la fréquence du

Alcalin :	Na	K	Rb	Cs		Fr
Transition	$3\ ^2S - 3\ ^2P$	$4\ ^2S - 4\ ^2P$	$5\ ^2S - 5\ ^2P$	$6\ ^2S - 6\ ^2P$	$6\ ^2S - 7\ ^2P$	$7\ ^2S - 7\ ^2P$
Raie étudiée (D_1) (nm)	589,6	769,9			459,4	(810,-)
Raie étudiée (D_2) (nm)	589,0	766,5	780,0	852,1		718,0
Colorant	Rhodamine 6G (ou 590)	Oxazine 750	Oxazine 750 ou DEOTC	HITC	STILBEN	D_1 : DEOTC D_2 : OXAZINE 725
Laser pompe : krypton raies	bleu vert ou jaune vert	rouges	rouges	rouges	uv	rouges
Laser pompe : argon raies	verte (514,5)				uv	
Puissance de pompe (Watts)	2 à 3	3 à 4	3 à 4	4 à 6	1,5 à 2	3 à 4
Puissance disponible du laser à colorant (mW)	50 - 80	30 - 50	30 - 50	15 - 30	5 - 10	30 - 50

TABLEAU 1

rayonnement ("jitter") à 2 MHz environ. Il utilise un Fabry-Perot confocal placé dans un four régulé en température. Toutefois cet asservissement ne répond pas aux critères exigés pour ce type d'expérience. En effet :

- La stabilité à long terme n'est que de l'ordre de 10 à 20 MHz/heure.

- Les erreurs sur la linéarité en balayage de la fréquence peuvent atteindre 1% de l'intervalle total balayé.

- Celui-ci ne peut être digitalisé et sa calibration n'est pas suffisamment précise.

- En position manuelle, l'accord de la fréquence sur une valeur donnée ne peut se faire finement dès que l'on affiche un intervalle spectral de balayage supérieur à 1 GHz.

3) Asservissement de la fréquence du laser sur sigmamètre.

Nous avons vu au Chapitre (VI) que le sigmamètre utilisé pour l'asservissement et le pilotage de la fréquence des lasers accordables est, par contre, tout à fait adapté à de telles expériences. Nous allons voir comment nous l'avons couplé au laser à colorant utilisé.

Ce laser possède deux boucles d'asservissement :

- La bande passante de la première boucle (de 450 Hz à 10 KHz) permet de compenser les fluctuations rapides de la fréquence du laser ; c'est elle qui permet de réduire ces fluctuations de fréquence à 2 MHz environ.

- La seconde boucle, par contre, compense les fluctuations lentes (de 0 à 450 Hz) ; son signal d'erreur, provenant du Fabry-Perot peut, en fait, dépendre entièrement d'un second signal d'erreur extérieur moyennant l'utilisation d'un intégrateur intermédiaire dont le signal de sortie est limité à ± 5 V (balayage "externe"). L'adaptation du sigmamètre au système initial ne pose donc pas de difficulté particulière.

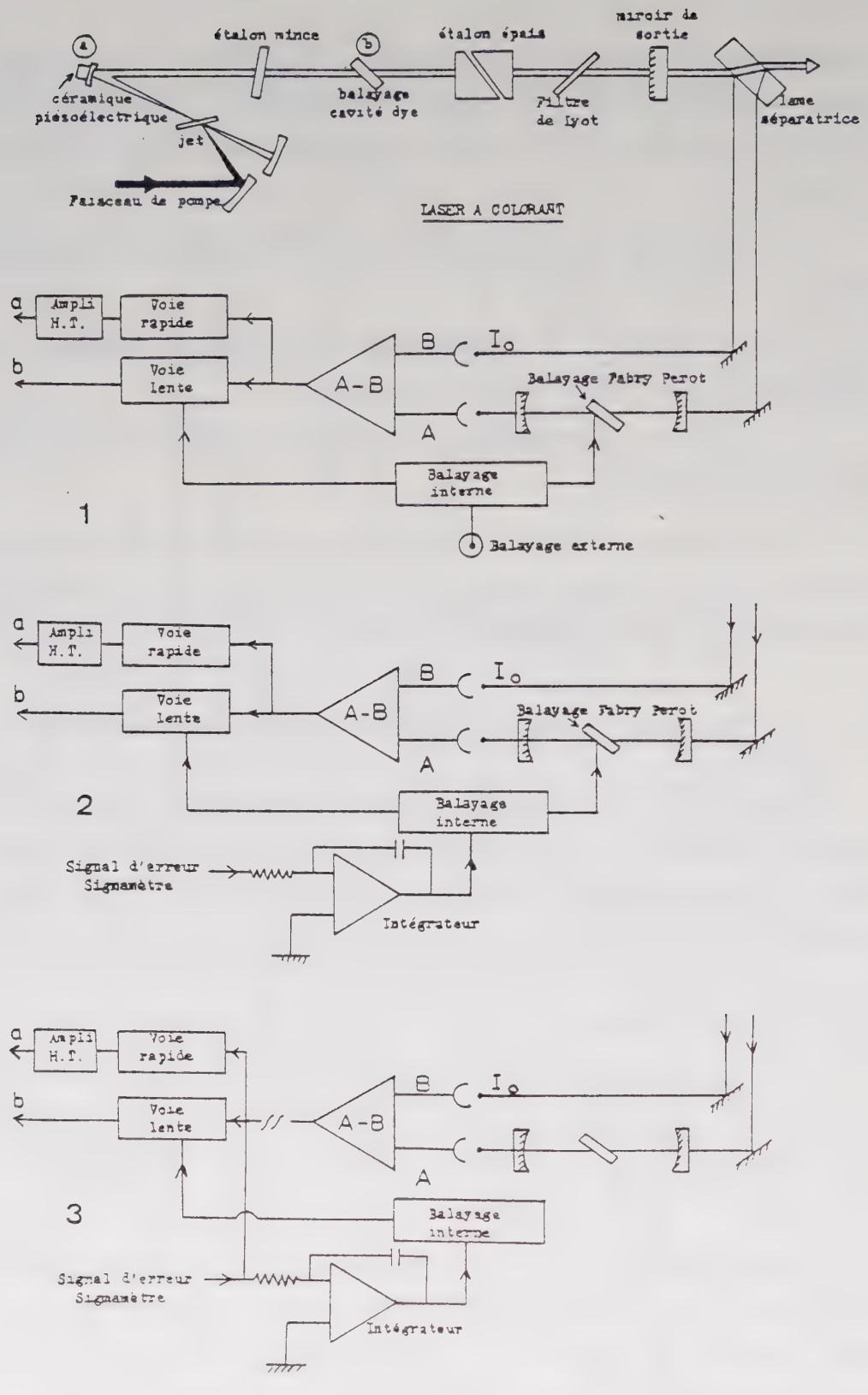


Figure 7

Modifications apportées à l'électronique d'asservissement du laser à colorant CR 599/21.

Cependant, pour certaines expériences (rubidium, césium), la longueur d'onde du laser à colorant est supérieure à 750 nm et la finesse du Fabry-Perot, qui fournit également le signal d'erreur de la boucle rapide, devient très médiocre et ne peut plus être utilisée dans de bonnes conditions. Moyennant quelques légères modifications de l'électronique d'asservissement du système initial, le signal d'erreur des deux boucles est alors directement fourni par le sigmamètre qui pilote, seul, le laser à colorant.

Le bloc diagramme de la Fig. (7) résume les trois situations rencontrées :

1. asservissement par Fabry-Perot seul,
2. asservissement par Fabry-Perot (voie rapide) + sigmamètre (voie lente,
3. asservissement par sigmamètre seul.

Le contrôle et le balayage de la fréquence du laser s'effectue ensuite suivant la méthode décrite dans la première partie.

D - CONSTANTES NUCLEAIRES MESUREES.

Comme nous l'avons signalé dans l'introduction, les paramètres nucléaires que l'on peut déduire des mesures effectuées au cours de l'étude des raies D_1 et D_2 sont : le spin I , le moment magnétique μ_I , le moment quadrupolaire spectroscopique Q et la variation du rayon carré moyen de la distribution des charges $\delta\langle r^2\rangle$.

1) Le spin I du noyau.

Le spin du noyau est mesuré par résonance magnétique ; le champ statique H_0 (égal à 0,9 gauss) décompose les niveaux de l'état fondamental $^2S_{1/2}$ en 2F+1 sous-niveaux Zeeman caractérisés par le nombre quantique m_F. En champ faible, l'écart de fréquence entre deux sous-niveaux Zeeman hyperfins adjacents est égal à $\delta\nu = \frac{g_F \mu_B H_0}{h}$, soit, pour le niveau $F = I+1/2$ et en négligeant un terme, du facteur de Landé g_F, proportionnel à g_I :

$$\delta\nu \approx \frac{2 \mu_B H_0}{(2I+1) h}$$

où H_0 est égale à 0,9 gauss,
μ_B est le magnéton de Bohr,
et h la constante de Planck.
($\delta\nu$ est typiquement de l'ordre de 1 MHz).

En accordant la fréquence du laser sur la transition $^2S_{1/2}$ $(F = I+1/2) \rightarrow {}^2P_{3/2}$ $(F' = I+3/2)$ en lumière polarisée σ^-, on peuple préférentiellement le sous-niveau Zeeman $^2S_{1/2}$ $(F = I+1/2 , m_F = -I-1/2)$ et le signal correspondant au nombre d'atomes que l'on détecte baisse. La différence de population induite par le pompage Zeeman entre le sous-niveau hyperfin $m_F = -I-1/2$ et les autres sous-niveaux Zeeman peut être détruite en appliquant un champ radiofréquence (parallèle au jet atomique) dans la zone d'interaction si sa fréquence correspond à l'écart $\delta\nu$ défini plus haut : en effet, celui ci redistribue les atomes sur tous les sous-niveaux Zeeman hyperfins et le signal détecté augmente. Ce champ radiofréquence est créé par une bobine placée sur l'axe du jet juste après la zone d'interaction des atomes avec la lumière du laser. Cette bobine est alimentée par un générateur HF. Le sommet de la courbe de résonance obtenue en balayant la fréquence du générateur permet donc de calculer I .

Notons que le nombre I étant quantifié, ce balayage n'a besoin

d'être ni linéaire, ni précis. Aussi, de manière générale, après avoir tracé la courbe de résonance d'un isotope de référence dont le spin est connu, il est facile d'en déduire la position des résonances (et donc la fréquence du générateur) pour les autres spins, ce qui facilite leur recherche (cette courbe de résonance peut être obtenue à fréquence HF fixe et en faisant varier H_0).

2) Le moment magnétique μ_I .

L'interaction du moment magnétique $\vec{\mu}$ du noyau avec le champ magnétique $\vec{H}$, proportionnel à $\vec{L} + \vec{S}$ et dû au mouvement orbital de l'électron de valence, donne naissance à la structure hyperfine. Au cours de l'étude de la raie D_1 , la position ν_{1-4} des quatre raies enregistrées est donnée par le système d'équations :

$$\nu_1 = \nu_0 - \frac{I}{2} A - \frac{I+1}{2} A' \quad , \quad (^2S_{1/2}\ (F = I+1/2) \longleftrightarrow {}^2P_{1/2}\ (F' = I-1/2))$$

$$\nu_2 = \nu_0 - \frac{I}{2} A + \frac{I}{2} A' \quad , \quad (^2S_{1/2}\ (F = I+1/2) \longleftrightarrow {}^2P_{1/2}\ (F' = I+1/2))$$

$$\nu_3 = \nu_0 + \frac{I+1}{2} A - \frac{I+1}{2} A' \quad , \quad (^2S_{1/2}\ (F = I-1/2) \longleftrightarrow {}^2P_{1/2}\ (F' = I-1/2))$$

$$\nu_4 = \nu_0 + \frac{I+1}{2} A + \frac{I}{2} A' \quad , \quad (^2S_{1/2}\ (F = I-1/2) \longleftrightarrow {}^2P_{1/2}\ (F' = I+1/2))$$

- où ν_0 est la fréquence associée à la transition $^2S_{1/2} - {}^2P_{1/2}$ en l'absence de structure hyperfine (écart des centres de gravité),
- I est le spin de noyau,
- A est la constante magnétique de structure hyperfine du niveau $^2S_{1/2}$,
- et A' celle du niveau $^2P_{1/2}$.

La mesure de ν_{1-4} permet donc de déduire A et A' . Si ce moment magnétique μ_{ref} d'un isotope pris comme référence est déjà connu (ce qui est le cas pour les isotopes stables des alcalins) on peut en déduire le moment magnétique μ de n'importe lequel des autres isotopes par le rapport :

$$\frac{\mu}{\mu_{ref}} = \frac{I}{I_{ref}} \times \frac{A}{A_{ref}}$$

qui est constant pour tous les isotopes d'un même élément à l'anomalie hyperfine près négligeable à notre niveau de précision.

3) Le moment quadrupolaire spectroscopique Q .

Ce facteur est également déduit des mesures de structures hyperfines mais cette fois à partir des mesures effectuées sur la raie D_2 . En effet, si le moment quadrupolaire du noyau est sans effet sur la structure des niveaux $P_{1/2}$ (les moments 2^{ℓ}-polaires observables doivent satisfaire la condition $\ell \leqslant 2J$), par contre il peut modifier considérablement la structure des niveaux $^2P_{3/2}$ en introduisant un terme supplémentaire dans les équations analogues à celles présentées plus haut. Cinq transitions optiques sont observées et l'on a :

$$\nu_1 = \nu_0 - \frac{I}{2} A - \frac{I+4}{2} A' - \frac{(I-2)(2I+3)}{4I(2I-1)} B \quad , \quad (^2S_{1/2}(F = I+1/2) \leftrightarrow ^2P_{3/2}(F' = I-1/2))$$

$$\nu_2 = \nu_0 - \frac{I}{2} A + \frac{I-3}{2} A' - \frac{I+3}{4I} B \quad , \quad (^2S_{1/2}(F = I+1/2) \leftrightarrow ^2P_{3/2}(F' = I+2/2))$$

$$\nu_3 = \nu_0 - \frac{I}{2} A + \frac{3I}{2} A' + \frac{1}{4} B \quad , \quad (^2S_{1/2}(F = I+1/2) \leftrightarrow ^2P_{3/2}(F' = I+3/2))$$

$$\nu_4 = \nu_0 + \frac{I+1}{2} A - \frac{I+4}{2} A' - \frac{(I-2)(2I+3)}{4I(2I-1)} B \quad , \quad (^2S_{1/2}(F = I-1/2) \leftrightarrow ^2P_{3/2}(F' = I-1/2))$$

$$\nu_5 = \nu_0 + \frac{I+1}{2} A + \frac{I-3}{2} A' - \frac{I+3}{4I} B \quad , \quad (^2S_{1/2}(F = I-1/2) \leftrightarrow ^2P_{3/2}(F' = I+1/2))$$

- où A' est cette fois la constante magnétique de structure hyperfine du niveau $^2P_{3/2}$,

- et B est la constante quadrupolaire de structure hyperfine de ce même niveau.

En mesurant ν_{1-5} on détermine ainsi les constantes A , A' et B . On peut calculer B à partir de l'écart :

$$(\nu_3 - \nu_2) = A' \left(\frac{2I+3}{2}\right) + B \left(\frac{2I+3}{4I}\right)$$

où le facteur A' est déterminé à partir des facteurs A_{ref} $(^2S_{1/2})$ et

$A'_{ref}\ (^2P_{3/2})$ de l'isotope stable pris comme référence. En effet si, comme auparavant, on néglige les effets dus à l'anomalie hyperfine, on a :

$$\frac{A'_{ref}}{A_{ref}} = \frac{A'}{A}$$

où $A >> A'$ peut être mesuré avec une précision relative plus grande. Ce facteur B permet de calculer le moment quadrupolaire spectroscopique Q qui lui est proportionnel et qui caractérise un type de déformation du noyau.

4) La variation du rayon carré moyen de la distribution des charges $\delta\langle r^2\rangle$; effet de volume.

$\delta\langle r^2\rangle$ est calculé à partir des mesures de déplacements isotopiques obtenus par rapport à un isotope pris comme référence ; en général (sauf pour le francium qui ne possède pas d'isotope stable) on utilise comme référence l'une des composantes hyperfines des raies D de l'isotope naturel étudié simultanément à l'aide d'un jet atomique annexe.

Le déplacement isotopique $\delta\nu$ se ramène à la somme de deux effets :

- le premier est l'effet de masse ($\delta\nu$ masse) ;
- le second est l'effet de volume ($\delta\nu$ volume).

$\delta\nu_{masse}$ est lui-même la somme du déplacement de masse normal (effet de Bohr) et du déplacement de masse spécifique, tous deux sont proportionnels à la masse réduite mais, dans le second cas, le coefficient de proportionnalité ne dépend que de facteurs électroniques. Il ne peut être déterminé qu'approximativement à partir des mesures effectuées sur deux isotopes de noyaux sphériques (ou supposés comme tels), c'est-à-dire pour lesquels $\delta\nu_{vol} = 0$. On étudie alors l'écart à la loi linéaire de $\delta\nu_{vol} = \delta\nu_{obs} - \delta\nu_{masse}$ qui permet de mettre en évidence l'effet de volume. La variation du rayon carré moyen de la distribution des charges est proportionnelle à cet effet de volume. On a :

$$\delta\langle r^2\rangle = K \cdot \delta\nu_{vol} \quad ,$$

où K dépend de plusieurs paramètres comme (pour deux noyaux de masse A_1 et A_2) :

- la densité de charge électronique que l'on peut déterminer à partir de la structure hyperfine du niveau fondamental $^2S_{1/2}$;
- le facteur d'écran calculé par des méthodes Hartree-Fock [51] ;
- la charge Z du noyau ;
- les nombres de masse A_1 et A_2 des noyaux .

Ces paramètres font partie des relations établies de manière théorique [52] qui permettent le calcul de K pour chaque isotope étudié et donc $\delta\langle r^2\rangle$ à l'aide des mesures de $\delta\nu_{vol}$.

III - FRANCIUM.

1 - PRESENTATION DES DIFFICULTES EXPERIMENTALES.

De nombreux résultats, utilisant la méthode décrite précédemment, ont été obtenus sur les alcalins (quelques publications correspondantes sont données en Annexe). Nous nous limiterons ici au cas de l'étude de la raie D_2 du francium qui nous a posé des problèmes expérimentaux très particuliers.

Parmi les éléments les plus lourds que l'on peut trouver dans la nature, le francium, qui ne possède pas d'isotope stable, était, jusqu'à récemment, le seul pour lequel jamais aucune transition optique n'avait pu être observée. En effet, depuis sa découverte par M. PEREY, en 1939 [53], de nombreuses expériences avaient été tentées, en vain, pour observer une quelconque transition optique de cet alcalin. Ces expériences utilisaient, pour la plupart, des méthodes de spectroscopie classique (hors ligne) , en cellule. Or :

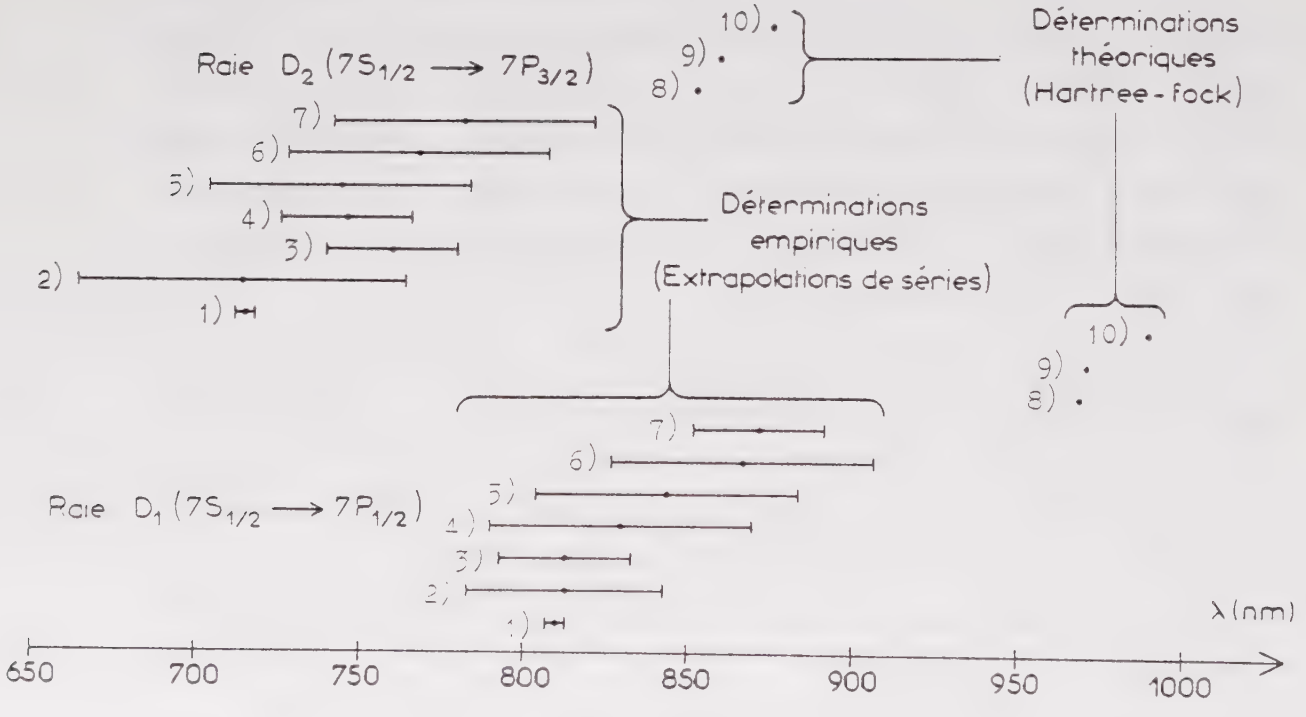
- d'une part, la quantité de francium que l'on peut produire par bombardement d'une cible d'uranium (réaction de spallation) et que l'on peut espérer stocker dans une cellule reste faible devant celle des autres éléments chimiques nécessairement présents dans la cellule ; auquel cas la raie de résonance intéressante est noyée dans un spectre très dense et il serait vain d'attribuer une des raies de résonance observées au francium ;

- d'autre part, le francium étant chimiquement très actif, il est rapidement absorbé par les parois de la cellule, ce qui constitue un lourd

handicap pour les méthodes classiques de spectroscopie par absorption. A cette difficulté, il faut ajouter que l'isotope le plus stable ($^{223}_{87}Fr$) n'a une durée de vie que de 23 minutes ce qui constitue, de ce fait, une difficulté supplémentaire aux méthodes "hors ligne".

Notre méthode de spectroscopie sur jet atomique, particulièrement sensible, permet de nous affranchir de tels défauts et l'isotope de francium le plus abondamment produit au séparateur isotopique du C.E.R.N. (ISOLDE) est le 212. Sa production est de l'ordre de 10^8 atomes/sec (supérieure de 3 ordres de grandeur à la limite de détection de notre méthode expérimentale). Aussi, nous pouvions espérer entreprendre l'expérience avec succès. Toutefois un certain nombre de problèmes restaient à résoudre :

1) Peut-on localiser la longueur d'onde de la transition D_1 ou D_2 du francium avec notre appareil ? Dans le paragraphe précedent, la lumière laser est supposée monochromatique. L'utilisation d'une telle lumière dans la recherche des raies de résonance est évidemment exclue :



dans l'ordre de 1 à 10 : réf. [54],[55],[56],[57],[58],[59],[60],[61],[62],[63].

la résonance optique, dans le cas du francium, a une largeur de l'ordre de 20 MHz et la fréquence de la transition (par exemple D_2) à trouver est localisée dans un intervalle de l'ordre de 5.10^7 MHz (de 700 à 800 nm) comme le montre la Fig. (8) qui rassemble les valeurs issues de divers calculs semi-empiriques ainsi que leur barre d'erreur (calculs proposés par différents auteurs). Une expérience préliminaire, à basse résolution, est donc indispensable. En supposant que l'on puisse éclairer le jet de telle sorte que le profil d'absorption des atomes soit élargi pour approcher la limite Doppler ($\simeq$ 900 MHz) et que l'on puisse disposer d'une source continue suffisamment intense (et dont le spectre continuement balayable couvre la largeur Doppler) il reste toutefois $1{,}25.10^5$ éléments spectraux à analyser. En balayant la source accordable à une vitesse typique de l'ordre de un élément spectral toutes les 15 secondes il faut plus de 20 jours pour couvrir l'intervalle spectral considéré ! En général, le temps de faisceau (de l'accélérateur) dont on peut disposer lors d'un "run" est beaucoup plus court (quelques jours). Pour permettre, donc, la mise en évidence d'un signal dans des temps beaucoup plus raisonnables, nous avons mis au point un laser à colorant continu multimodes dont le système de balayage, spécialement adapté pour notre expérience, permet de réduire notablement ce temps de balayage. Ce système est décrit dans le paragraphe (2)(Dispositif Experimental).

2) Nous pouvons remarquer que notre méthode d'analyse de résonance n'est pas, en général, compatible avec une excitation en bande large. En effet, une telle excitation dont la largeur spectrale serait supérieure à la structure hyperfine du niveau fondamental aurait pour effet de conserver l'équilibre entre les populations des deux niveaux sans aucune modification de leur moment magnétique effectif (même en lumière polarisée). Heureusement, la structure hyperfine attendue est beaucoup plus grande que la largeur Doppler : on remarque, en effet, que le $^{213}_{87}Fr_{126}$ et le $^{209}_{83}Bi_{126}$ ont le même nombre de neutrons et le proton impair est dans le même niveau nucléaire $h_{9/2}$; de plus, ils ont le même spin nucléaire I=9/2 . Leurs moments magnétiques doivent être de valeur assez proche. Le "bien fondé" de telles hypothèses se vérifie dans d'autres éléments : par exemple, entre ^{133}Cs (I=7/2) et ^{139}Lu (I=7/2) pour lesquels les

valeurs de μ_I/μ_N sont respectivement 2,577 et 2,776 . La valeur de μ_I mesurée pour le ^{209}Bi est 4,1 μ_N [64]. Avec cette valeur, on peut calculer le facteur de couplage magnétique du ^{213}Fr :

$$A\,(^2S_{1/2}) = \frac{0{,}00849\, Z_i\, Z_a^2}{n^{*3}} \cdot \frac{\mu_I}{I} \cdot Fr \cdot \left(1-\frac{d\Delta}{dn}\right)(1-\delta)(1-\varepsilon)\ cm^{-1} \qquad [65]$$

- n^* est le nombre quantique effectif que l'on peut obtenir par extrapolation en suivant la séquence isoélectronique : le potentiel d'ionisation $V_{(cm^{-1})}$ du francium, égal à $\frac{R}{n^{*2}}$, peut être déduit approximativement des rapports :

$$\frac{V_{Ra\ II}}{V_{Fr\ I}} \simeq \frac{V_{Ba\ II}}{V_{Cs\ I}}$$

avec $V_{Ra\ II} = 81842{,}3\ cm^{-1}$ (10,15 eV)
$V_{Ba\ II} = 80686{,}9\ cm^{-1}$ (10 eV)
$V_{Cs\ I} = 31406{,}7\ cm^{-1}$ (3,89 eV)
et R , la constante de Rydberg égale à $109737{,}3\ cm^{-1}$,

on trouve $n^* = 1{,}856$.

- $Fr = 2{,}7975$, $(1-\delta) = 0{,}86$, $(1-\varepsilon) \simeq 0{,}98$ sont des corrections relativistes tabulées et $\left(1-\frac{d\Delta}{dn}\right)$ est de l'ordre de 1,1 [65] .

- Pour un électron s , Z_i correspond à la charge du noyau (soit 87) et Z_a est égal à 1 pour les atomes neutres.

On obtient ainsi pour la largeur de la structure hyperfine :

$$\Delta\nu = (I+1/2)\ A = 5A \simeq 41\ GHz\ !$$

Cette structure, très étendue, amène une autre difficulté expérimentale : Dans le paragraphe c) (section B) nous avons supposé que le champ magnétique H est suffisamment fort pour découpler $\vec{J}$ et $\vec{I}$. Ce champ magnétique (inhomogène) est produit par un aimant hexapolaire dont l'intensité du champ magnétique sur les pôles est de 9000 gauss environ. L'interaction magnétique égale à $2\mu_0\, H/h$ vaut alors :

$$(1{,}4\ MHz/gauss) \times (9.10^3\ gauss) = 12{,}6\ GHz\ .$$

Pour que l'approximation du "champ fort" soit valable, il faut donc que la structure hyperfine soit inférieure à cette valeur. Or, comme nous venons de le montrer plus haut, la structure attendue pour le francium est bien supérieure ! Les atomes vont donc se comporter différemment selon leur occupation dans les niveaux Zeeman hyperfine (on a vu que, dans ce cas, le moment magnétique dépend du champ magnétique ; seuls les atomes ayant $m_F = \pm (I+1/2)$ ont leur moment magnétique ($\mu = \pm \mu_B$) indépendant de H, voir Fig. (3)). Dans ces conditions, lors du pompage optique hyperfin, l'atome ne voit pas nécessairement son moment magnétique inversé comme il a été exposé au §.4, Chap. II-B ; l'orientation de son moment magnétique par pompage optique hyperfin est donc beaucoup moins efficace et le signal à la résonance optique est moins fort que dans le cas du découplage total de $\vec{J}$ et de $\vec{I}$ en champ fort. Toutefois dans la transition D_2, le pompage Zeeman en lumière polarisée (comme nous l'avons exposé au §.3, Chap. II-B) est toujours efficace car les sous-niveaux $m_F = \pm(I+1/2)$ ont leur moment magnétique $\mu = \pm \mu_B$ indépendant de la valeur du champ magnétique. C'est ce pompage qui est utilisé comme mécanisme d'orientation atomique dans la recherche de la transition $^2S_{1/2} \longleftrightarrow {}^2P_{3/2}$.

Dans ce même Chapitre II-B (§.4), il a été aussi remarqué qu'en champ magnétique fort, la transition $^2S_{1/2}$ $(F = I-1/2) \longleftrightarrow {}^2P_{3/2}$ $(F = I-3/2)$ ne peut être détectée. Ceci n'est plus vrai en champ magnétique intermédiaire : on peut voir sur la Fig. (3) que les sous-niveaux Zeeman peuvent avoir un moment magnétique positif ou négatif ; un pompage optique Zeeman est donc possible, mais, à l'inverse du cas précédent, g_F étant positif pour le niveau $F = I+1/2$ et négatif pour le niveau $F = I-1/2$, l'ordre des sous-niveaux est inversé et un pompage avec une lumière polarisée σ^+ donnera un signal négatif tandis qu'un pompage en lumière polarisée σ^- donnera un signal positif.

Pour résumer le paragraphe : Les structures hyperfines du niveau fondamental du francium attendues étant très grandes, on ne peut plus considérer que la sélection de l'état magnétique du niveau fondamental, que ce soit par pompage optique hyperfin ou par pompage Zeeman, soit

effectuée en champ fort. Ce pompage sera donc moins efficace que pour les autres alcalins pour lesquels la structure hyperfine du niveau fondamental est toujours inférieure à la valeur limite 12,6 GHz. L'amplitude des signaux détectés dans le cas du francium sera moins grande. Cependant, la composante hyperfine du niveau excité $^2P_{3/2}$ (F = I-3/2) habituellement absente de la structure hyperfine enregistrée pour les autres alcalins par notre méthode expérimentale peut, dans le cas du francium, être mise en évidence par pompage Zeeman en lumière polarisée (toutefois l'amplitude du signal correspondant sera très faible).

2 - EXPERIENCE A BASSE RESOLUTION.

Nous allons donc décrire une première expérience, à basse résolution, destinée à localiser la raie de résonance D_2 (transition $7\,^2S_{1/2} - 7\,^2P_{3/2}$). Celle-ci nécessite quelques modifications du montage expérimental initial ; nous les décrirons dans le paragraphe suivant puis nous donnerons les résultats de l'expérience.

a) Modifications au montage expérimental.

Le but de ces modifications est d'élargir la fonction d'appareil :

- soit en mettant à profit l'effet Doppler du jet,
- soit par une excitation en bande large.

En fait, dans ce dernier cas, vue la largeur de la fonction d'appareil à haute résolution définie par le jet atomique, l'utilisation de lasers multimodes ne permet pas d'avoir un taux de recouvrement suffisant pour être assuré de l'excitation à résonance. Nous avons donc été amené à combiner les deux effets.

L'élargissement par effet Dollper ne pouvant se faire en augmentant

l'angle solide du jet dont la géométrie est bien définie, on éclaire, plus simplement, les atomes du jet par une lumière divergente en utilisant deux lentilles cylindriques, Fig. (9). Celles-ci sont placées

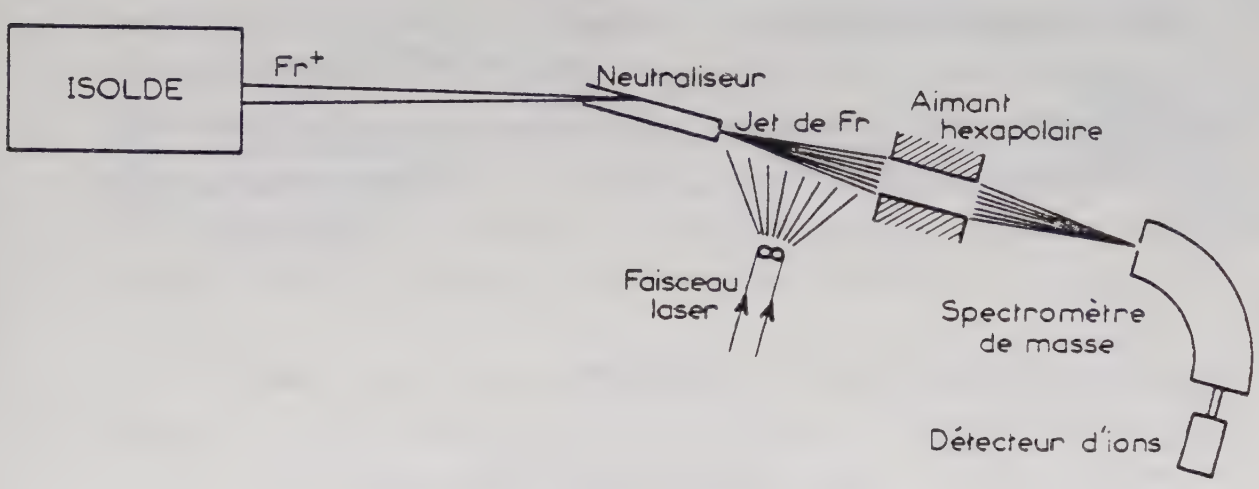


FIGURE 9

côte-à-côte, à quelques centimètres de la zone d'interaction, sur l'axe du faisceau laser et perpendiculairement au plan défini par cet axe et celui du jet atomique. L'opération nécessaire pour mettre en place, sur le jet d'atomes radioactifs, le dispositif comprenant les deux lentilles est rapide et ne pose aucun problème.

A l'aide de ces lentilles, la largeur Doppler résiduelle est alors de l'ordre de 1 GHz.

La seconde modification est plus importante et concerne le laser. Il s'agit d'un laser à colorant multimode conçu en collaboration avec Jobin-Yvon et spécialement adapté pour cette application particulière. Le colorant utilisé est de l'Oxazine 725 ; le domaine spectral qu'il recouvre (680 à 780 nm environ) correspond assez bien à celui où devrait se situer vraisemblablement la raie de résonance D_2 (voir Fig. (8)). Ce colorant est pompé par les raies rouges (à λ = 647,1 nm et 676,4 nm) d'un laser à krypton ionisé.

Le schéma de principe du laser est décrit par la Figure (10a) .

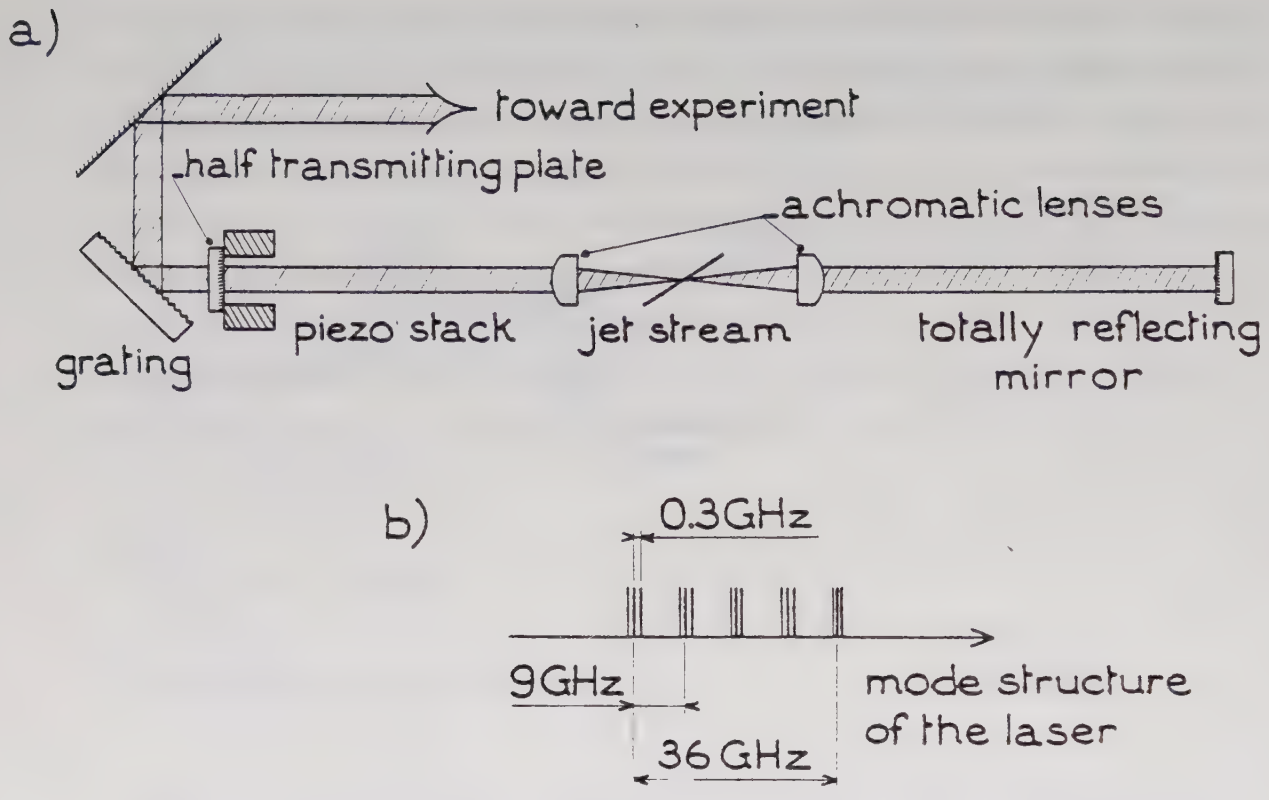


FIGURE 10

Contrairement aux cavités coudées utilisées couramment dans les systèmes classiques, celle-ci est conçue initialement de manière symétrique de telle sorte que le jet (incliné à angle de Brewster) se trouve au centre de la cavité laser. Une telle configuration facilite, en effet, les oscillations à modes multiples car elle diminue le couplage entre modes voisins. Deux lentilles placées symétriquement focalisent le faisceau intra-cavité sur le jet (excité par le faisceau d'un laser à krypton ionisé non représenté sur la figure). La cavité est fermée d'un côté par un miroir plan et de l'autre par un réseau plan doré qui permet de sélectionner la longueur d'onde. L'angle de miroitement est égal à 45° et le balayage s'effectue à l'aide d'un moteur pas à pas. Le faisceau laser utilisé dans l'expérience provient de la réflexion correspondant à l'ordre zéro du réseau en utilisant un miroir supplémentaire extra-cavité solidaire au réseau et placé perpendiculairement à ce dernier ; l'axe du faisceau laser utilisé pour l'expérience est

invariant par rotation du réseau. La longueur de la cavité est de l'ordre de 50 cm ; les modes longitudinaux sont ainsi espacés de 300 MHz. Devant le réseau on a placé une lame semi-réfléchissante perpendiculairement à l'axe du laser de telle sorte que l'ensemble réseau + lame semi-réfléchissante (*) joue le rôle d'étalon Fabry-Perot intra-cavité dont l'intervalle spectral libre $\Delta\sigma$ est égal à 9 GHz et dont la finesse permet de sélectionner 3 ou 4 modes longitudinaux (couvrant ainsi la largeur Doppler définie plus haut). Cette lame augmente également l'efficacité du réseau et diminue les pertes dans la cavité.

En résumé, compte tenu de l'intervalle spectral sélectionné par le réseau, le profil spectral multimode, émis par le laser, est composé de 5 ou 6 "paquets" de quelques modes longitudinaux, la distance entre deux paquets étant de l'ordre de 9 GHz, Fig. (10b) .

Le balayage de ce profil spectral s'effectue de la manière suivante : La lame placée devant le réseau étant montée sur une céramique piezoélectrique, on lui applique une rampe haute tension, ce qui permet de déplacer linéairement la fréquence de chaque paquet de mode . L'amplitude de cette rampe est choisie de telle sorte que le balayage est égal ou légèrement supérieur à $\Delta\sigma$, soit 9 GHz. L'intervalle spectral total ainsi balayé est donc égal à 5 ou 6 fois $\Delta\sigma$ (soit 45 GHz environ), ce qui réduit la durée de l'enregistrement d'un même facteur. Au bout du temps nécessaire pour balayer $\Delta\sigma$, la tension ou borne de la céramique piezoélectrique est remise à zéro, le réseau tourne de manière à sélectionner l'intervalle spectral de 45 GHz suivant, et le processus recommence...

(*) La deuxième face de cette lame possède un traitement diélectrique antiréfléchissant et fait un petit angle avec le faisceau afin d'éviter tout autre effet de cavité.

b) Enregistrement du signal ; calibration.

Pendant le balayage décrit précédemment, le faisceau laser est haché à la fréquence de 2 Hz par un modulateur mécanique, ce qui permet d'enregistrer séparément deux types de signaux : l'un avec lumière excitatrice, l'autre sans. Ceci permet de normaliser les intensités détectées et de s'affranchir des fluctuations de la production des atomes de francium essentiellement dues aux variations de l'intensité du faisceau de protons issus de l'accélérateur. Un enregistrement typique est donné sur la Figure (11) . Un signal de résonance a pu être observé après avoir commencé le balayage de la fréquence du laser vers 700 nm. Sa calibration est assurée à l'aide d'un spectrographe à réseau (THR SOPRA) et d'une lampe spectrale à néon destinée à fournir des raies de référence. Après avoir accordé la longueur d'onde du laser sur celle du francium, on impressionne une plaque photographique, ce qui permet de positionner la raie laser par rapport aux deux raies du néon. La Figure (12) reproduit la plaque photographique.

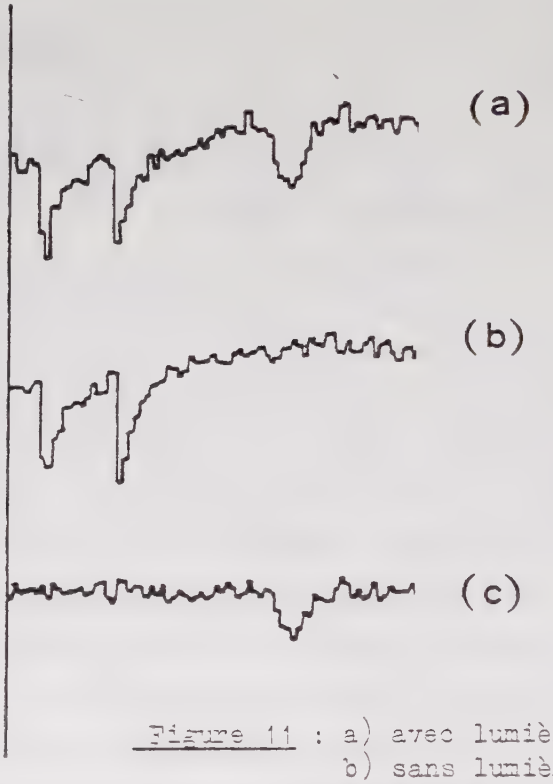


Figure 11 : a) avec lumière
b) sans lumière
c) = a - b

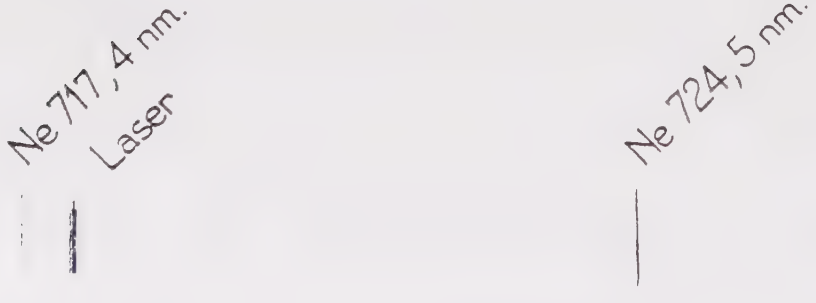


FIGURE 12

Reproduction de la plaque photographique donnant la position de la raie du laser multimode (dont la fréquence est centrée à la résonance D_2 du du Fr) par rapport aux raies de résonance du néon.

On distingue la structure en paquets du rayonnement émis par le laser multimode. Pour cette expérience à basse résolution, la mesure de la position des paquets ne peut donner lieu à une mesure très précise de la longueur d'onde mais, toutefois, un tel enregistrement est utilisé comme repère pour l'accord de la fréquence du laser monomode dans les expériences à haute résolution que nous allons décrire maintenant.

3 - EXPERIENCE A HAUTE RESOLUTION.

L'expérience précédente a donc permis de trouver la raie de résonance D_2 du francium et de la localiser dans une fourchette de 45 GHz ($\approx 0{,}8$ Å à $\lambda \approx 720$ nm). L'étude peut désormais être poursuivie à haute résolution. L'expérience se déroule alors suivant la méthode décrite au cours du chapitre précédent où le jet atomique est éclairé perpendiculairement par le faisceau issu d'un laser à colorant continu, monomode et accordable dont la fréquence est balayée par un sigmamètre.

a) Mesure de la raie de résonance D_2 .

Avec un tel laser il est possible de mesurer la raie de résonance avec une plus grande précision que celle obtenue avec le laser multimode : on enregistre sur une même plaque photographique la position de la fréquence du laser accordée successivement sur l'une des composantes hyperfines donnant un signal négatif (*), puis sur l'une des composantes

---

(*) A la précision d'une telle mesure, le choix de la composante hyperfine, donnant un signal négatif, importe peu ; même chose pour celle donnant un signal positif.

donnant un signal positif. Un tel enregistrement est reproduit sur la Figure (13). L'écart entre les deux raies laser enregistrées correspond donc à la structure hyperfine du niveau fondamental $^2S_{1/2}$. A l'aide des raies de référence du néon la position du centre de gravité a été mesurée et trouvée égale à :

717,97(1) nm (dans l'air).

FIGURE 13

b) Enregistrement de la structure hyperfine.

La Figure (14) représente un enregistrement typique de la structure hyperfine de la raie D_2 de l'isotope de masse 209. Comme nous l'avons mentionné dans le premier paragraphe, cette structure est différente de celle enregistrée pour les autres alcalins puisque la transition $(F = I-1/2) - (F' = I-3/2)$ peut être mise en évidence. Le signal que l'on détecte pour cette transition est négatif en lumière polarisée σ^+ et positif en lumière polarisée σ^-. La structure enregistrée étant supérieure au domaine spectral balayable continuement par la fréquence du laser accordable (limite à 30 GHz), nous avons effectué ce balayage en deux parties raccordées à l'aide du sigmamètre de la façon suivante : Le laser à colorant possède deux étalons Fabry-Perot intra-cavité, l'un mince, l'autre épais. La rotation manuelle de l'étalon mince provoque des sauts de modes espacés d'une quantité égale à l'intervalle spectral libre $\Delta\sigma$ de l'étalon épais, soit environ 10 GHz.

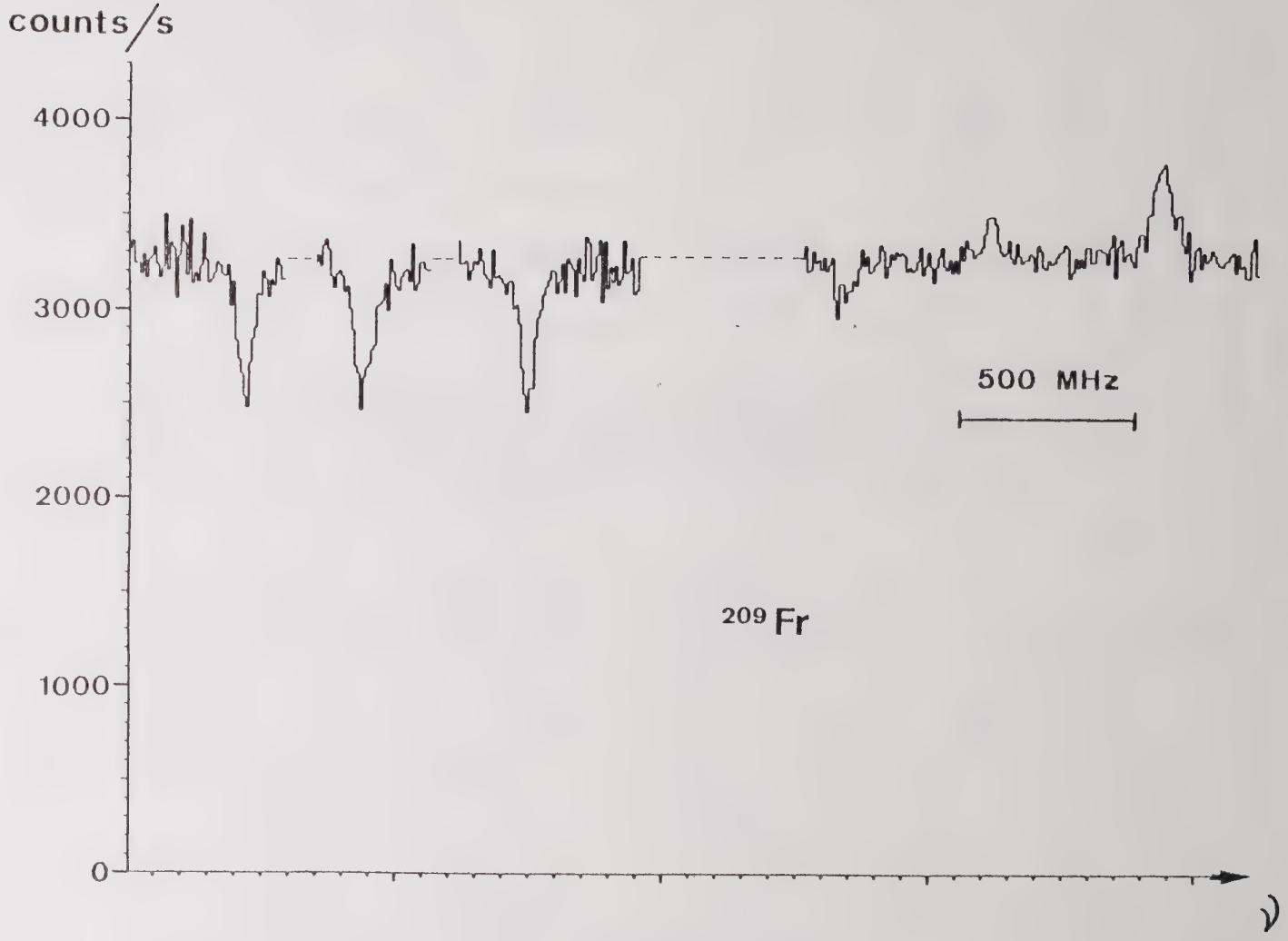


FIGURE 14

Structure hyperfine de la transition $7\,^2S_{1/2} - 7\,^2P_{3/2}$ de l'isotope 209 du francium.

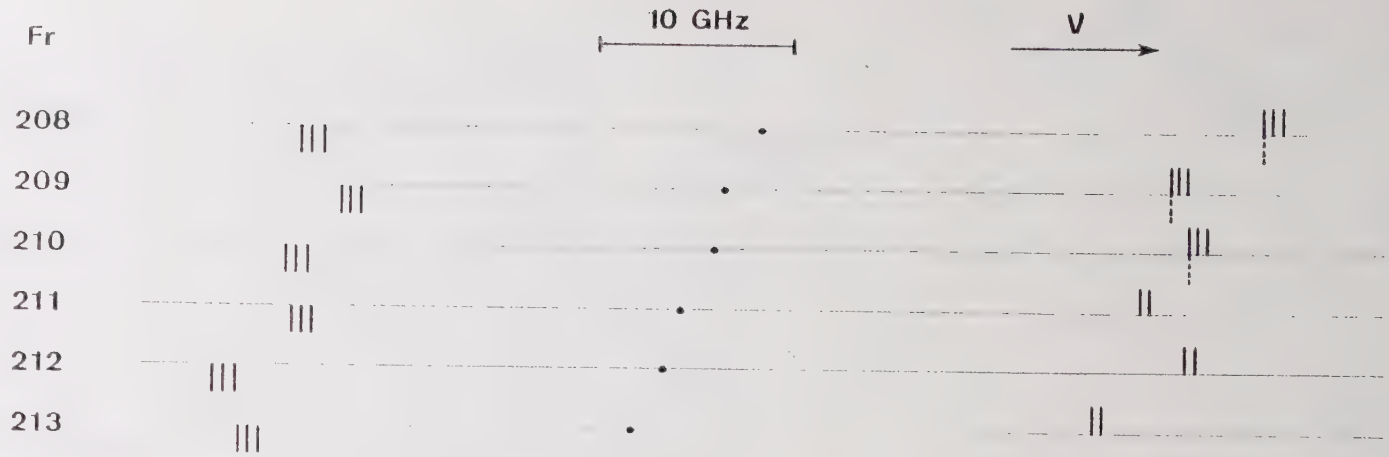


Figure 15 : Structures hyperfines des isotopes de masse 208 à 213. Les points caractérisent la position du centre de gravité de chaque structure.

A	I	IS (MHz)	$A(^2S_{1/2})$ (MHz)	$A(^2P_{3/2})$ (MHz)	$B(^2P_{3/2})$ (MHz)
208	7	6645.2 (9.2)	6639.7 (7.0)	72.8 (.5)	8.9 (7.5)
209	9/2	4771.4 (7.5)	8590.5 (10.5)	93.1 (.6)	-61.0 (5.8)
210	6	4243.1 (8.0)	7182.4 (8.1)	77.9 (.2)	47.6 (2.2)
211	9/2	2533.7 (8.0)	8698.2 (10.5)	94.7 (.2)	-55.3 (3.4)
212	5	1628.3 (7.5)	9051.3 (9.5)	99.1 (.9)	-35.3 (15.5)
213	9/2	0	8744.9 (10.5)	94.5 (1.6)	-20.7 (17.0)

Tableau 2 : Constantes atomiques et nucléaires des isotopes 208 - 213 du francium.

Afin de mesurer $\Delta\sigma$ avec plus de précision et vérifier que de tels sauts de mode peuvent être effectués de manière reproductible, une petite expérience est nécessaire. Celle-ci consiste à positionner la fréquence du laser à la résonance d'une transition hyperfine et, après avoir décalé cette fréquence de 1 ou 2 sauts de mode, on effectue un balayage continu et linéaire à l'aide du sigmamètre jusqu'à retrouver le signal de résonance ; $\Delta\sigma$ est alors déterminé par le nombre de pas correspondant au balayage total et donné par le sigmamètre. Ainsi, nous avons trouvé $\Delta\sigma = 10{,}00$ GHz avec une reproductibilité de l'ordre de 50 MHz.

c) Résultats.

La précision sur la mesure de la structure hyperfine du niveau fondamental est donc plus faible que celle des autres alcalins. Cependant ces mesures nous ont permis de déterminer la structure hyperfine et la position du centre de gravité de six isotopes (de masse 208 à 213) dont les enregistrements ont été reproduits schématiquement sur la Figure (15) .

Le Tableau (2) donne les valeurs des constantes $A\,(^2S_{1/2})$, $A\,(^2P_{3/2})$ et $B\,(^2P_{3/2})$ calculées pour chacun des isotopes. On peut remarquer que le rapport $A\,(^2S_{1/2}) / A\,(^2P_{3/2})$ est constant à 0,5% près pour tous les isotopes ; cela reflète la confiance que l'on peut avoir dans ces mesures. Notons également que la valeur de la structure hyperfine du niveau fondamental du Francium 213, calculée empiriquement au début de ce chapitre (41 GHz), est en bon accord avec celle que nous avons mesurée : $9/2 \times 8744{,}9 \simeq 39{,}35$ GHz .

d) Détermination de la raie de résonance D_1 .

La méthode de calcul que nous avions utilisée peut également être appliquée pour le calcul de la structure fine en suivant la même séquence isoélectronique. Sur le tableau suivant nous avons rassemblé les valeurs

des raies D_1 et D_2 pour chacun des éléments Cs I , Ba II et Re II [53] dont on déduit facilement la valeur du centre de gravité :

Element \ cm^{-1}	D_1	D_2	Structure fine	Centre de gravité
Ra II	21351,20	26208,86	4857,66	24589,64
Ba II	20261,562	21952,422	1690,86	21388,80
Cs I	11178,24	11732,35	554,11	11547,65

En utilisant la même relation de proportionnalité :

$$\frac{\text{Fr I}}{\text{Ra II}} = \frac{\text{Cs I}}{\text{Ba II}}$$

on déduit les valeurs correspondantes du centre de gravité et de la structure fine du francium, puis celles des raies D_1 et D_2

Fr I (cm^{-1})	12214,49	13806,39	1591,90	13275,76

La longueur d'onde dans l'air de ces raies D est égale à :

	D_1	D_2
Fr I	818,48 nm	724,10 nm

La valeur expérimentale de la raie D_2 est égale à 717,97(1) nm ; si l'on corrige la valeur calculée de la raie D_1 en la multipliant par le rapport $\frac{717,97}{724,10}$ on trouve, pour la longueur d'onde dans l'air de la raie de résonance D_1 du francium, la valeur

811,54 nm

D'autres expériences seront entreprises pour déterminer expérimentalement la valeur de cette structure fine.

IV - DOUBLE RESONANCE.

1 - INTRODUCTION.

Parmi les grandeurs nucléaires, dont la mesure est accessible par notre méthode expérimentale, figure le moment quadrupolaire spectroscopique Q du noyau. Sa mesure, comme celle de la variation du rayon carré moyen de la distribution des charges à l'intérieur du noyau permet de rendre compte de ses déformations [13]. Si de telle déformations sont aisément mises en évidence pour des éléments lourds, il n'en est pas de même pour certains éléments légers pour lesquels leur recherche est particulièrement délicate, comme nous allons le voir dans la suite. Nous avons vu que le facteur Q peut être déterminé à partir de la mesure de la constante de structure hyperfine quadrupolaire B (proportionnelle à la déformation du noyau) déduite des écarts entre les sous-niveaux hyperfins. En particulier, l'écart $\Delta\nu$ entre les sous-niveaux hyperfins $F' = (I+3/2)$ et $F' = (I+1/2)$ du niveau $^2P_{3/2}$ permet de calculer B par la relation :

$$\Delta\nu = A\left(\frac{2I+3}{2}\right) + B\left(\frac{2I+3}{4I}\right)$$

où I est le spin nucléaire de l'isotope étudié

et A la constante magnétique de structure hyperfine.

Ce facteur peut être déterminé à partir de celui (A_0) du niveau fondamental $^2S_{1/2}$ (A_0 est plus grand, donc peut être mesuré avec une précision relative bien meilleure) : en effet le rapport $\frac{A_0}{A}$ est constant pour tous les isotopes d'un même élément (à l'anomalie hyperfine

Isotope	Spin I	A $^2P_{3/2}$ MHz	B $^2P_{3/2}$ MHz
^{119}Cs	$\frac{9}{2}$	82,7(16)	404(18)
^{25}Na	$\frac{5}{2}$	18,6(1)	-1,6(14)

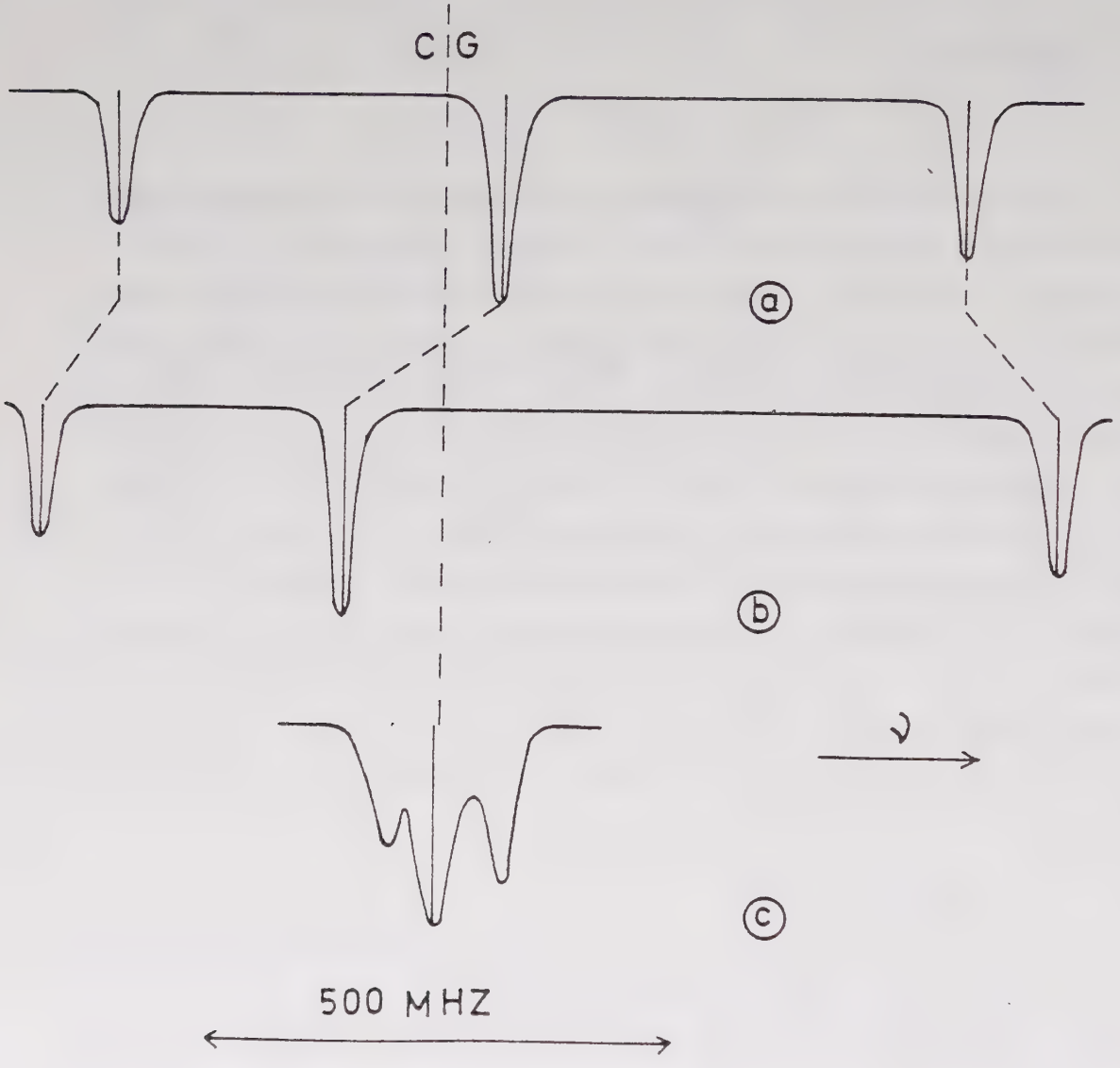


Figure 16

(a) Calcul de la position des composantes hyperfines $F' = I-1/2$, $F' = I+1/2$ et $F' = I+3/2$ du niveau $^2P_{3/2}$ pour le ^{119}Cs ($I=9/2$) en supposant $b=0$.

(b) Structure enregistrée ($b \neq 0$).

(c) Structure enregistrée pour l'isotope 25 du sodium.

près, négligeable à notre niveau de précision) et est, en général, mesuré de manière précise pour l'isotope stable.

La Figure 16 (b) donne un exemple typique d'une structure hyperfine du niveau $^2P_{3/2}$ enregistrée pour l'isotope 119 (spin $I = \frac{9}{2}$) du césium dont le noyau est fortement déformé (A = 82,7(16) MHz et B = 404(18) MHz). Le tracé (a) représente la position calculée des raies dans l'hypothèse d'une déformation nulle. Pour ce cas précis, la présence d'une déformation ne fait aucun doute et le calcul du facteur B ne pose aucun problème. Par contre, dans le cas des études spectroscopiques de la raie D_2 des isotopes du sodium dont un enregistrement (correspondant à l'isotope 25 de spin I=5/2) a été reproduit à l'échelle (courbe (c)), la largeur spectrale de la structure du niveau $^2P_{3/2}$ (environ 4 fois plus petite que celle du niveau $^2P_{1/2}$) ne dépasse pas, dans le meilleur des cas 160 MHz et les trois composantes ne sont pas résolues. L'exemple (c) de la figure illustre bien la difficulté présentée par de telles études effectuées sur une série d'isotopes de cet alcalin bien que, dans ces expériences, nous ayons augmenté la collimation du jet atomique d'un facteur 2 par rapport à celles consacrées à l'étude de la raie D_1 , afin de diminuer l'effet Doppler résiduel et, par conséquent, d'augmenter la résolution. Ce facteur a été obtenu en intercalant une fente supplémentaire (escamotable) sur l'axe du jet, entre les deux éléments séparables et identiques de l'hexapole. Cependant cette amélioration ne se fait pas sans une diminution notable de l'amplitude du signal ; ainsi, dans le cas présent, cette augmentation de la collimation du jet permet de réduire à 40 MHz la largeur résiduelle des raies mais au détriment du signal qui, lui, diminue d'un facteur 3. Cette diminution limite ainsi le nombre possible d'isotopes susceptibles d'être étudiés par cette méthode : en effet leurs productions diminuent au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la vallée de stabilité. Or , comme nous l'avons signalé dans l'introduction, ce sont justement vers ces zones particulièrement instables que les déformations des noyaux, prédites par la théorie, sont les plus importantes.

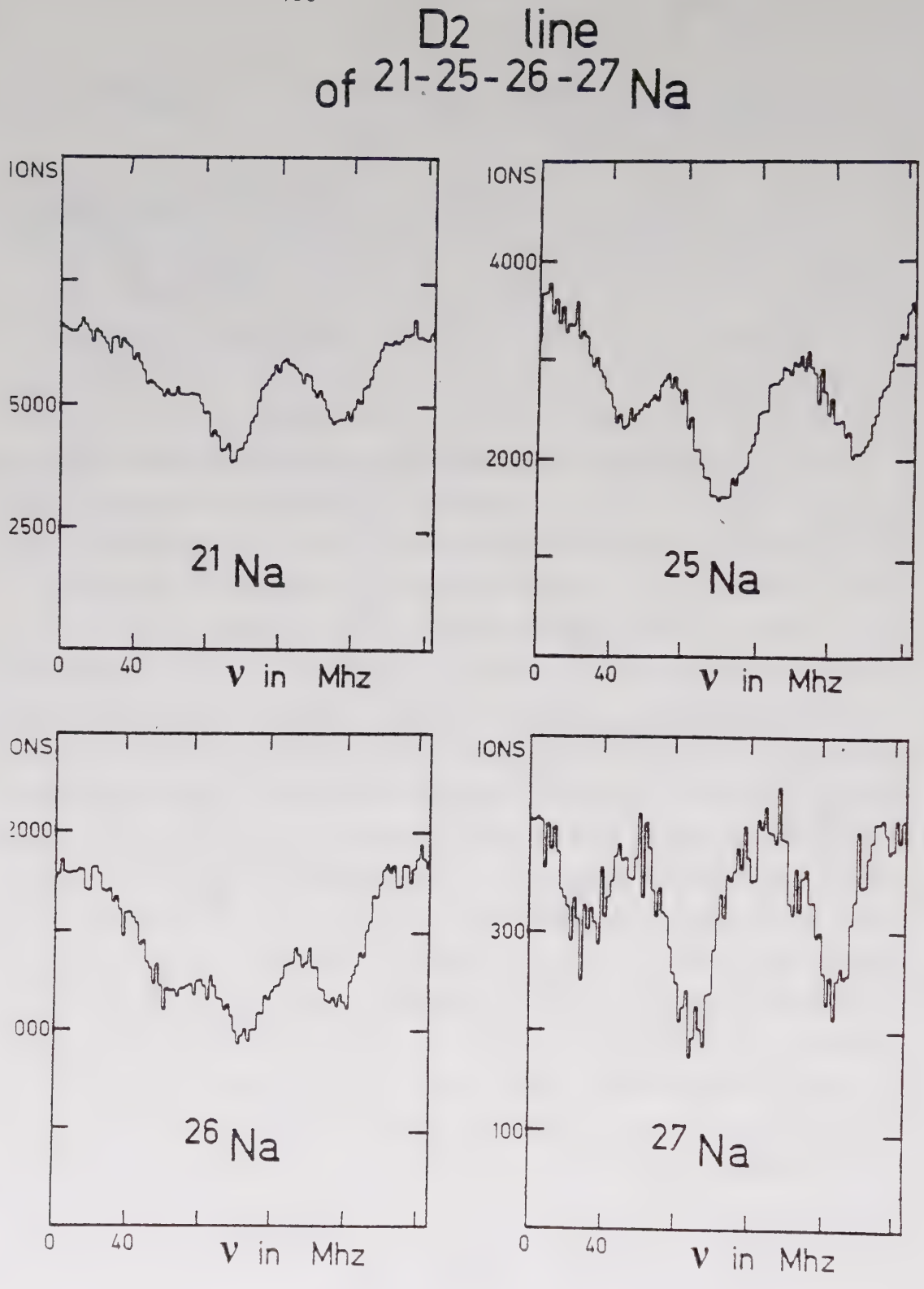


Figure 17

Structures hyperfines enregistrées du niveau $^2P_{3/2}$ des isotopes radioactifs du sodium.

Nous avons vu que l'écart entre les composantes hyperfines, étudiées suivant cette méthode expérimentale, est donnée par une mesure relative de la fréquence du laser accordable pilotée par le sigmamètre. Il s'agit d'une méthode de mesure purement "optique" ; elle nécessite tout d'abord l'enregistrement complet de la structure correspondant aux transitions partant du niveau fondamental $^2S_{1/2}$ $(F = I+1/2)$ vers les niveaux hyperfins $F' = I-1/2$, $F' = I+1/2$, $F' = I+3/2$ du niveau excité $^2P_{3/2}$ (composantes "rouges" de la raie D_2). De plus, comme la structure est mal résolue, une déconvolution de l'enveloppe spectrale enregistrée est nécessaire. Sur la Figure (17) sont représentés des enregistrements typiques des structures correspondant aux isotopes de sodium de masse 21, 25, 26 et 27. La structure du niveau $^2P_{3/2}$ de l'isotope de masse 27 $(I=5/2)$ est la mieux résolue ; en effet l'écart entre les sous-niveaux hyperfine $F'=4$ et $F'=3$ est égal à 78,5 MHz. C'est aussi le dernier isotope que l'on a pu étudier par celle méthode purement optique avec un relativement bon rapport signal sur bruit. Pour les isotopes plus lourds (dont la production diminue d'environ un ordre de grandeur chaque fois que l'on passe d'un isotope de masse A à l'isotope de masse A+1) l'obtention de rapports signal/bruit équivalents aurait nécessité des enregistrements de trop longue durée incompatibles avec le temps qui nous était alloué pour l'expérience . Les isotopes de masse 22 et 24, quant à eux, ont une structure hyperfine $^2P_{3/2}$ qui ne peut être résolue : $\Delta\nu(F = I+3/2) - (F' = I+1/2)$ est de l'ordre de 33 MHz et 29 MHz respectivement.

Dans le souci à la fois de réduire la durée de l'enregistrement pour permettre l'étude d'isotopes plus lourds et d'améliorer la résolution sans perdre sur le signal, nous avons utilisé une seconde méthode expérimentale permettant une mesure plus précise de l'écart entre les sous-niveaux hyperfins $F' = I+3/2 \rightarrow F' = I+1/2$ du niveau excité $^2P_{3/2}$. Il s'agit d'une méthode de double résonance. Après avoir présenté cette méthode en exposant les problèmes spécifiques qu'elle pose, nous détaillerons le principe de l'expérience et le mode d'étalonnage choisi. Enfin nous donnerons les résultats obtenus avec une brève discussion

des erreurs systématiques ; ces résultats seront comparés à ceux obtenus par la méthode purement optique. L'étude et l'interprétation théorique des mesures ne seront pas abordées ici ; pour une analyse détaillée on pourra se reporter à la thèse de J. M. SERRE [17].

2 - PRESENTATION DE LA METHODE.

Dans les expériences optiques, la résolution est essentiellement limitée par la largeur Doppler résiduelle définie par la collimation du jet. Pour les fréquences de transitions optiques ($\nu \approx 5.10^{14}$ Herz) et une vapeur de sodium à 2000°K, la largeur Doppler est de l'ordre de 3400 MHz [15] ; une résolution de 40 MHz nécessite donc une collimation de l'ordre de $\frac{3400}{40} = 85$ qui, comme nous l'avons vu, ne peut être augmentée. Pour des transitions radio-fréquence (dans les expériences que nous allons décrire $\nu \approx 5.10^{7}$ à 8.10^{7} Herz). Cette largeur Doppler sera tout à fait négligeable ($3400 \times 10^{-7} < 1$ KHz) (*) , tous les atomes du jet résonnant en même temps (nous pourrons alors utiliser un jet aussi ouvert que possible). La résolution limite est deux fois la largeur naturelle du niveau $^2P_{3/2}$, soit 20 MHz. Le principe de la méthode de double résonance est bien connu : il s'agit d'établir une différence de population entre deux niveaux excités (ici $F' = I+3/2$ et $F' = I+1/2$) par une excitation optique correspondant à la transition $3\,^2S_{1/2}\ (F = I+1/2) \longleftrightarrow 3\,^2P_{3/2}\ (F' = I+3/2)$. Cette différence de population sera détruite par la résonance magnétique induite entre ces

---

(*) En fait, dans des expériences sur jet atomique, nous devons tenir compte du temps d'interaction $\Delta\tau$ de l'atome de vitesse $\bar{v}$ avec le champ PF ; pour des expériences effectives sur des atomes leur niveau fondamental la largeur limite de la courbe de résonance sera égale à $\Delta\nu = \frac{1}{2\pi\Delta\tau}$.

deux niveaux par une onde électromagnétique de haute fréquence. La fréquence RF résonnante donne alors l'écart de fréquence entre les deux niveaux hyperfins considérés. On peut noter que, contrairement à la méthode optique décrite précédemment qui nécessite un balayage de la fréquence du laser sur toute la structure, dans le cas présent une seule courbe de résonance est tracée ; sa largeur est égale à 20 MHz environ et le sommet donne directement la valeur de l'écart à mesurer. Le tracé de cette courbe de résonance peut se faire avec un minimum de points (10 points environ, distants de 3 MHz, soit un balayage total de 30 MHz) ; le gain de temps par rapport à la méthode optique sera donc appréciable et il sera possible d'entreprendre l'étude d'isotopes plus rares.

Cette courbe de résonance peut, en fait, être obtenue de deux façons différentes :

- ou la fréquence RF est fixe et on change la valeur du champ magnétique statique directeur, la résonance est alors obtenue lorsque l'écart entre deux des sous-niveaux Zeeman hyperfins correspond à la fréquence RF ; l'écart hyperfin cherché en champ magnétique nul est ensuite obtenu par extrapolation ;

- ou bien la valeur du champ magnétique reste fixe et on balaye la fréquence RF .

Pour le niveau $^2P_{3/2}$ des alcalins, l'effet Zeeman hyperfin est non-linéaire dans le domaine de balayage d'environ 30 MHz nécessaire pour explorer la courbe de résonance (de largeur limite 20 MHz). Cette non-linéarité entraîne une dissymétrie de la courbe de résonance difficile à analyser et pouvant donner lieu à des erreurs systématiques. Comme la précision sur la mesure du facteur B doit au moins être de l'ordre de 1 MHz, nous avons préféré le second schéma de balayage à champ magnétique statique constant et où l'on fait varier la fréquence RF . Ceci implique que la puissance RF vue par les atomes, à chaque valeur de la fréquence (balayée par pas de 3 MHz environ), soit

constante. Ceci constitue une difficulté expérimentale importante puisque cette puissance RF qu'il est nécessaire de calibrer, doit, dans ces expériences C.E.R.N., être transportée sur près de 50 mètres dans la zone "chaude" où se trouve le jet d'atomes radioactifs placé en ligne derrière l'accélérateur. Il faut donc disposer d'une lecture directe de cette puissance émise dans la zone d'interaction des atomes du jet avec la lumière laser et avoir un étalonnage aussi précis que possible de cette puissance en fonction de la fréquence.

3 - PRINCIPE DE L'EXPERIENCE.

Nous avons vu (Chapitre 2) qu'avec notre méthode de détection des transitions optiques, la transition :
$3\,^2S_{1/2}$ $(F = I+1/2) \longleftrightarrow 3\,^2P_{3/2}$ $(F' = I+3/2)$ ne peut être observée qu'en lumière polarisée (pompage optique Zeeman) : une lumière polarisée σ^+ augmente le signal moyen détecté en l'absence d'interaction avec la lumière laser (c'est-à-dire la moitié des atomes de moment magnétique $m_J = +1/2$) et une lumière polarisée σ^- accordée sur cette transition diminuera le signal détecté.

Dans cette expérience la lumière, dont la fréquence est calée sur cette transition, est polarisée σ^+ (voir §.5 Chap.II). L'atome se désexcite en retombant au niveau de départ et peut donc passer plusieurs fois sur le niveau $3\,^2P_{3/2}$ $(F' = I+3/2)$ pendant le temps d'interaction avec la lumière (typiquement $\Delta\tau = 10^{-5}$ secondes), la durée de vie du niveau excité étant approximativement de l'ordre de 10^{-8} secondes. On réalise ainsi une différence de population entre le niveau excité $3\,^2P_{3/2}$ $(F' = I+3/2)$ et $3\,^2P_{3/2}$ $(F' = I+1/2)$. qui n'est pas soumis à une excitation optique. L'application d'un champ magnétique RF de fréquence égale à l'écart $\Delta\nu$ entre les deux niveaux excités tendra à équipeupler ces deux niveaux si son

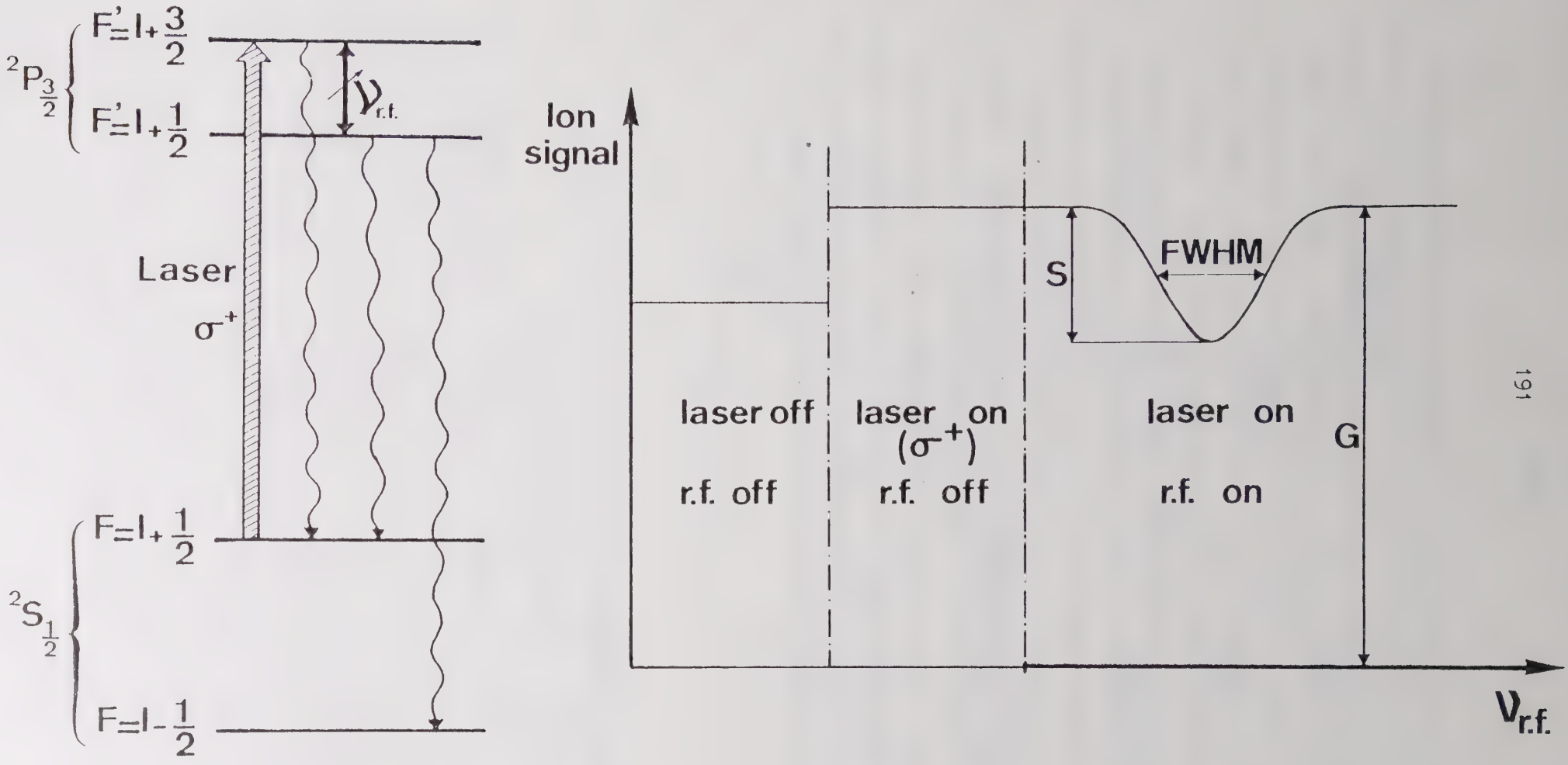


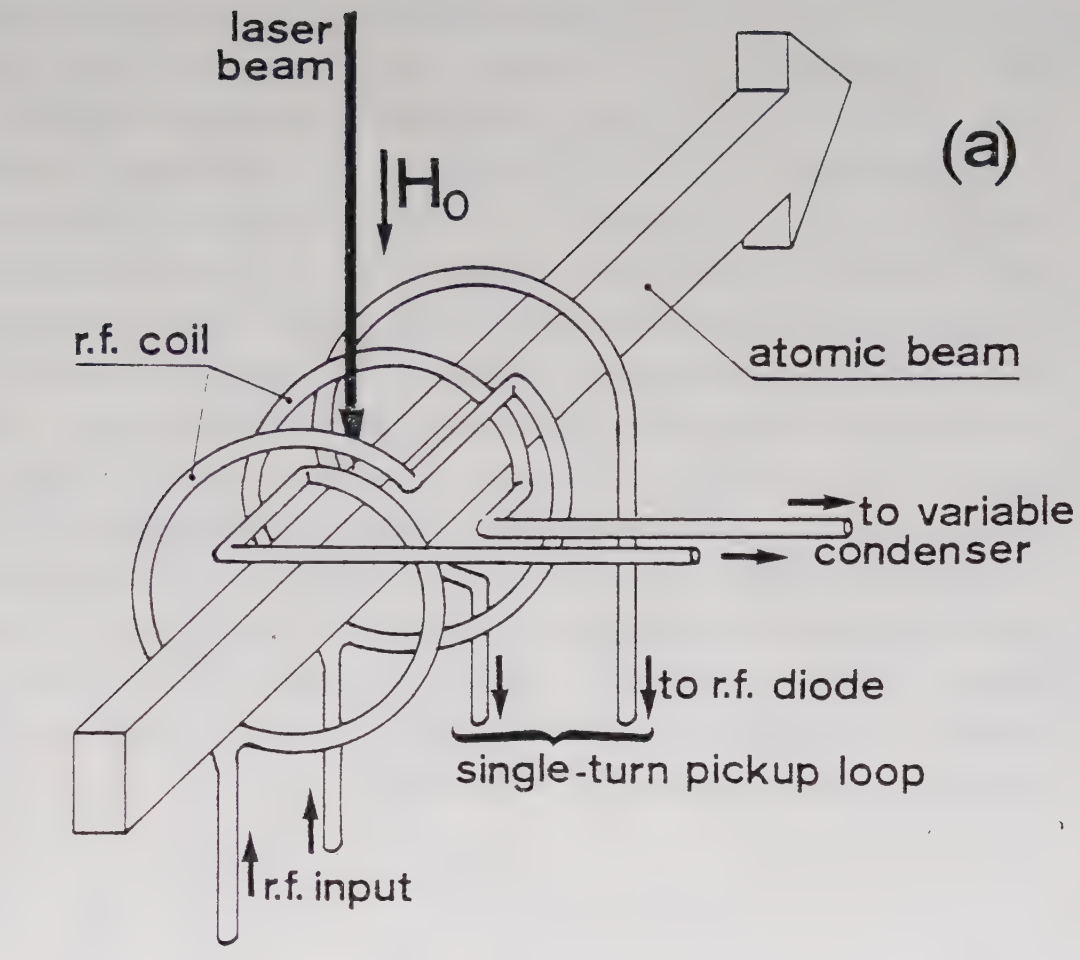
Figure 18 : Principe de l'expérience de double résonance.

intensité est suffisante pour que le transfert puisse être obtenu de manière efficace pendant la durée de vie du niveau excité $^2P_{3/2}$, soit 10^{-8} s , ce qui est pratiquement réalisable avec des champs magnétiques oscillants de l'ordre de quelques gauss (voir §.2). Les atomes transférés sur le niveau $3\,^2P_{3/2}$ $(F = I+1/2)$ peuvent, soit se désexciter sur le niveau de départ $3\,^2S_{1/2}$ $(F = I+1/2)$, soit sur l'autre niveau hyperfin du fondamental $3\,^2S_{1/2}$ $(F = I-1/2)$, Fig. (18). Dans ce dernier cas, ils sont hors résonance avec le champ lumineux et, après traversée de l'hexapole, ils sont défocalisés (tous les sous-niveaux m_F ayant un moment magnétique $m_J = -1/2$). Les atomes transférés vers le niveau fondamental $3\,^2S_{1/2}$ $(F = I+1/2)$, eux, peuvent à nouveau interagir avec le champ lumineux et le processus recommence. Grâce aux passages multiples pendant le temps d'interaction avec la lumière (10^{-5}s), une bonne partie des atomes est ainsi transférée vers le niveau fondamental $3\,^2S_{1/2}$ $(F = I-1/2)$ et le signal vu par le détecteur diminue en conséquence de façon notable ; ainsi avec un champ magnétique de l'ordre de 1 gauss, le rapport signal/fond est de l'ordre de 20% (Fig. 18).

4 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL.

La zone d'interaction du jet atomique avec le faisceau lumineux et le champ RF est schématisé sur la Fig. (19). Le champ B_0 est produit par deux bobines de Helmoltz (non représentées sur la Figure), centrées sur l'axe défini par le faisceau laser et placées de part et d'autre du jet atomique. L'intensité du courant qui circule dans les bobines est ajustée de telle sorte que ce champ statique soit environ égal à 1 gauss (le déplacement des sous-niveaux Zeeman correspondant est de l'ordre de 1 MHz).

Le champ RF est produit à l'aide de deux enroulements de fil de cuivre suivant une configuration analogue à celle des bobines de Helmoltz



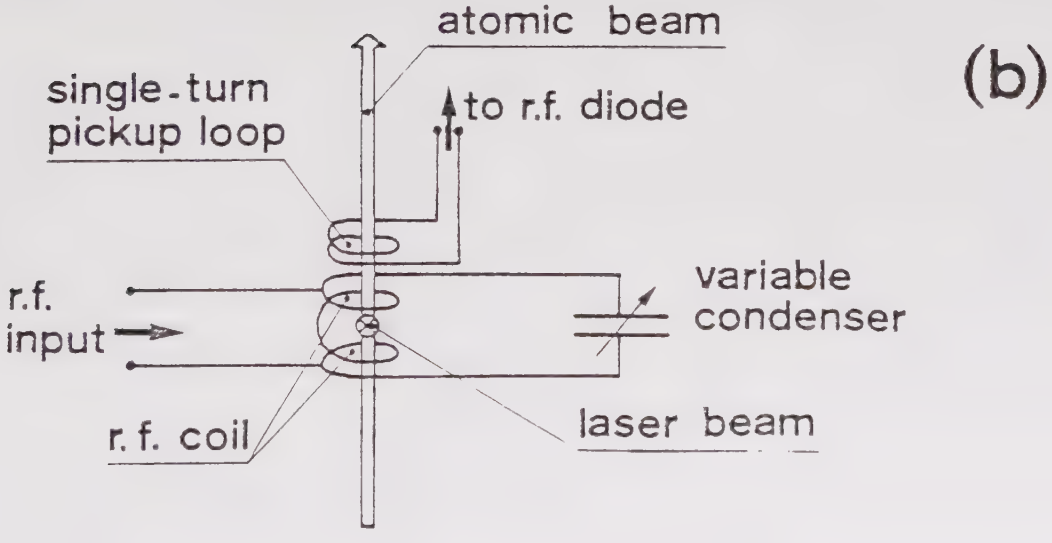


Figure 19 : Schéma de principe de la zone d'interaction.

(d'induction $L \approx 1{,}5.10^{-7}$ Henry) et faisant partie d'un circuit bouchon RLC . Ce circuit bouchon est alimenté par un générateur RF commercial (Rohde et Schwartz SMS 0,4 - 1040 MHz) suivi d'un amplificateur large bande (50 watts, 10 - 250 MHz) ; ce qui couvre largement le domaine spectral intéressé (de 50 à 80 MHz environ). Le condensateur variable à air (10 à 100 pF) est ajusté à la résonance du circuit bouchon pour chaque valeur de la fréquence du générateur RF. Cet accord est commandé à distance grâce à l'utilisation d'un petit moteur électrique monté sur l'axe de rotation du condensateur variable. Le champ magnétique RF parallèle au jet atomique est approximativement homogène dans la zone d'interaction. L'accord à la résonance du circuit bouchon est détecté par une boucle de lecture placée parallèlement aux enroulements de cuivre du circuit. Ce signal est redressé par une diode RF (non représentée sur la figure) placée au voisinage de la boucle de lecture. En effet, le signal peut de cette manière être facilement transporté sur de longues distances. Notons que l'amplitude du signal redressé n'intervient pas directement dans la calibration du champ RF.

5 - ETALONNAGE DE LA PUISSANCE DU CHAMP RF EN FONCTION DE LA FREQUENCE.

La meilleure façon de faire l'étalonnage de la puissance du champ RF vu par les atomes en fonction de sa fréquence est de réaliser une expérience de double résonance avec un dispositif expérimental semblable à celui utilisé dans les expériences C.E.R.N., mais sur un élément présentant un effet Zeeman linéaire. Celui-ci doit également être facilement vaporisable et avoir une longueur d'onde compatible avec les colorants couramment utilisés. Le mieux adapté est le Baryum 138 dont le noyau, pair-pair, n'a pas de moment magnétique ($I=0 \rightarrow \mu_I=0$) . C'est également celui qui est le plus abondant dans le mélange naturel ($\simeq 72\%$). La transition de résonance $6s^2\ {}^1S_0 \longleftrightarrow 6s6p\ {}^1P_1$ est à $\lambda = 553{,}5$ nm .

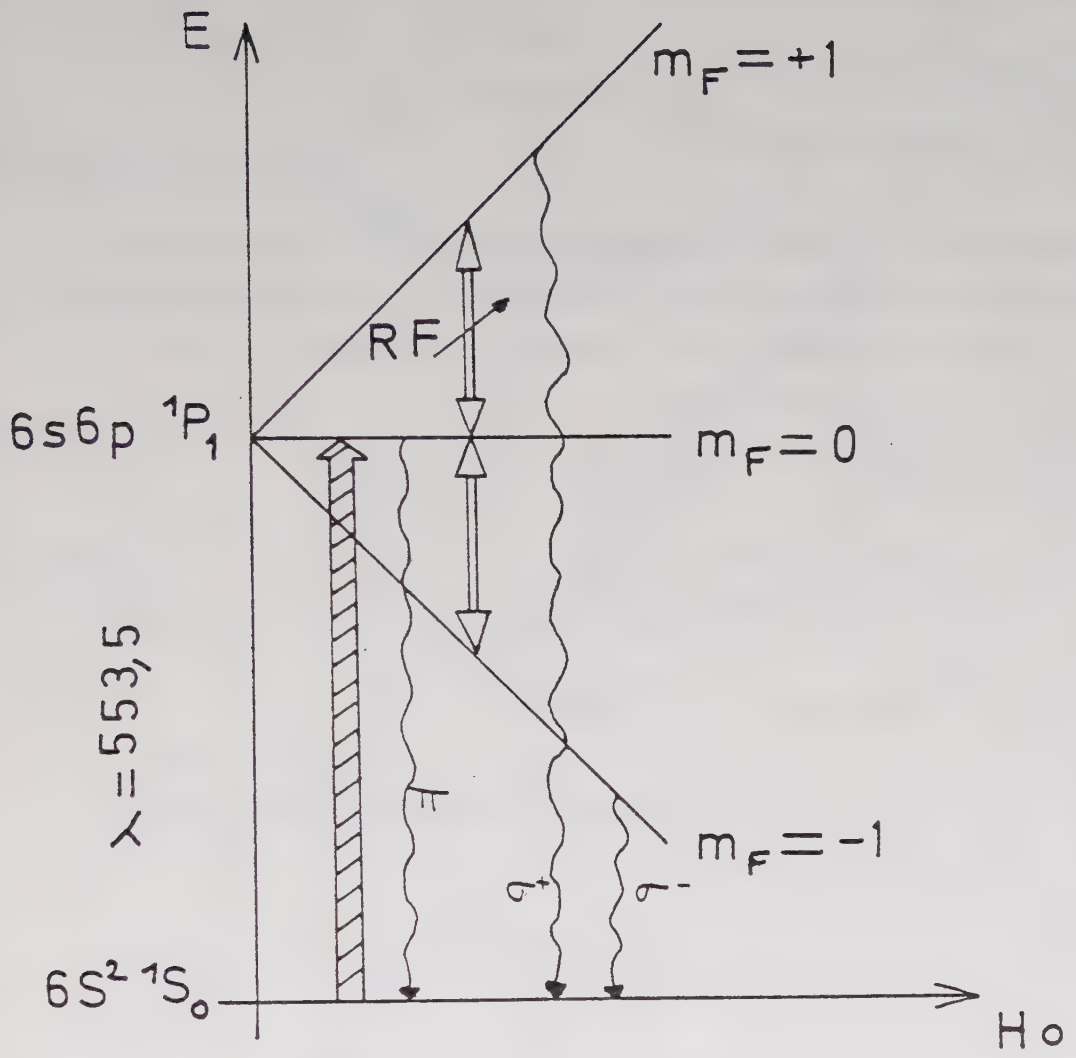


Figure 20

Excitation en double résonance des sous-niveaux Zeeman de l'état $6s6p\ ^1P_1$ du baryum .

L'effet Zeeman dans cette transition est normal, le niveau $^1P_1$ se décompose en sous-niveaux $m_F = 0, \pm 1$ dont les écarts sont proportionnels au champ magnétique appliqué

$$\Delta E = m_F \mu_B H_0 = \pm \mu_B H_0$$

où μ_B est le magnéton de Borr.

La transition π entre les niveaux $^1S_0$ et $^1P_1$ ($m_F=0$) est à fréquence fixe indépendante du champ magnétique et les écarts de transitions σ (niveau fondamental vers niveau excité de valeur $m_F = \pm 1$) par rapport à π sont précisément :

$$\Delta\nu = \frac{\Delta E}{h} = \pm \frac{\mu_B}{h} H_0 \qquad \text{(voir Fig. 20)}$$

avec $\mu_B = 9{,}274078(36)\ 10^{-24}$ Joule/Tesla

et $h = 6{,}626176(36)\ 10^{-34}$ Joule·seconde .

On a $\Delta\nu \simeq 1{,}4.10^4$ MHz/Tesla ou 1,4 MHz/Gauss .

Dans l'expérience réalisée, le jet de baryum est perpendiculaire à la fois au champ statique $\vec{H}_0$ et au faisceau lumineux dont la polarisation est orientée suivant $\vec{H}_0$ (voir Fig. 21) [1]. La lumière de fluorescence π émise à la résonance est détectée par un photomultiplicateur (PM_1) dont le signal est utilisé pour asservir la fréquence

---

(1) Nota : Dans les expériences C.E.R.N. le champ statique $\vec{B}_0$ est, en fait, parallèle au faisceau laser polarisé circulairement. Toutefois, il n'a pas le même rôle que le champ $\vec{H}_0$ utilisé dans cette expérience: en effet, celui-ci sert à écarter les sous-niveaux Zeeman d'une valeur comparable aux écarts hyperfins à mesurer dans la raie D_2 . Dans les expériences C.E.R.N., le champ statique $\vec{B}_0$ est très faible et ne sert qu'à séparer légèrement les sous-niveaux Zeeman (d'une amplitude inférieure à 1 MHz) entre lesquels on effectue un pompage Zeeman en lumière polarisée σ^+ .

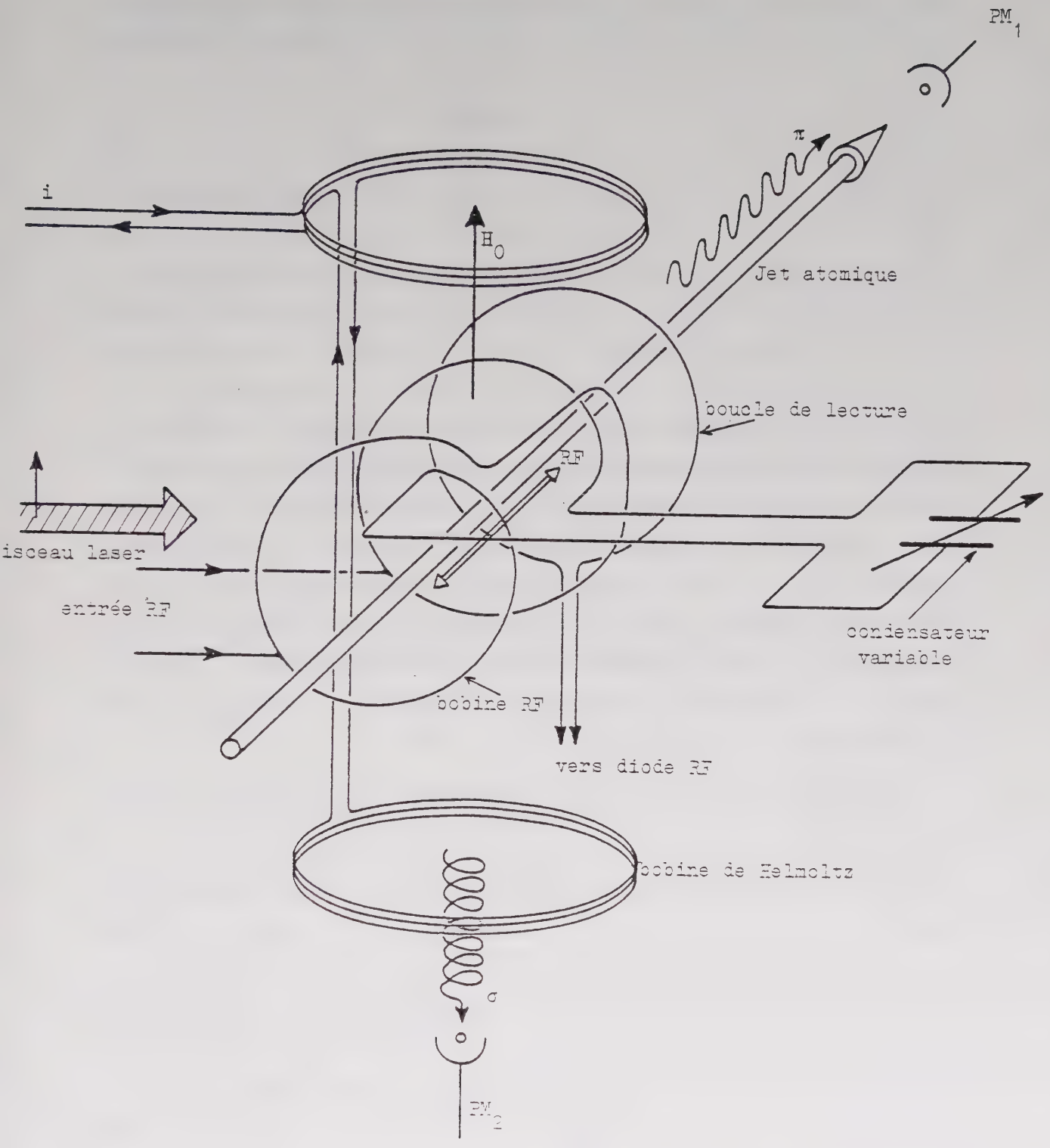


Figure 21

Schéma de principe de la zone d'interaction.

du laser sur la résonance (suivant une méthode semblable à celle décrite dans l'Annexe (III) de la première partie). Le champ RF est produit par le dispositif expérimental décrit précédemment : il est parallèle au jet atomique. En accordant la capacité variable, on amène le circuit bouchon à la résonance que l'on détecte en regardant sur un oscilloscope le signal recueilli par la boucle de lecture (Fig. 21). Le champ magnétique statique H_0 est ensuite balayé en changeant la valeur du courant dans les bobines de Helmoltz, la résonance de la transition dipolaire magnétique étant obtenue pour $\frac{\mu_B H_0}{h} = \nu$. A mesure que l'on s'approche de cette résonance, les atomes sont graduellement transférés sur les sous-niveaux $m_F = \pm 1$ et la lumière de fluorescence σ induite est détectée par un second photomultiplicateur (PM_2) placé à 90° du premier. L'intensité du signal de fluorescence enregistré est directement proportionnelle à l'intensité de champ magnétique oscillant vu par les atomes. A fréquence fixe, on vérifie, en changeant la valeur de la tension V fournie par le générateur RF , que cette intensité est bien proportionnelle à V^2 , évitant ainsi d'éventuels effets de saturation. On ajuste alors la tension du générateur RF jusqu'à obtenir une valeur, fixée à l'avance, de l'intensité de la lumière de fluorescence σ^+ détectée, la même pour toutes les valeurs de ν comprises entre 45 et 110 MHz.

En balayant la fréquence du générateur RF par pas de 3 MHz environ, et après accord du circuit bouchon, on note pour chaque valeur de ν la valeur de la tension injectée (après ajustement) dans l'amplificateur linéaire. Ceci permet d'obtenir le tracé désiré de la courbe d'étalonnage.

A l'aide de ce tracé, une seconde expérience test est réalisée sur un jet de sodium naturel. On a pu ainsi vérifier que la courbe de résonance obtenue, correspondant à l'écart entre ces sous-niveaux hyperfins $F'=3$ et $F'=2$, est bien symétrique et centrée sur la valeur bien connue (58,77 MHz) à mieux que 1 MHz [66].

Bien entendu, dans ces deux expériences les caractéristiques du circuit bouchon, de la boucle de lecture et les longueurs des cables

transportant le courant RF sont identiques à celles utilisées dans les expériences définitives.

6 - INTENSITE DU CHAMP RF .

Un ordre de grandeur de l'intensité du champ RF, nécessaire pour induire une transition dipolaire magnétique dans un niveau excité de durée de vie τ , peut être estimé dans le cas du Baryum 138 :

a) Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, g_F se réduit à $g_J=1$ et $m_F = m_J = 0, \pm 1$. L'effet Zeeman est normal (linéaire) et l'écart d'énergie ΔE entre les sous-niveaux hyperfins adjacents en fonction de l'intensité d'un champ statique H_0 est égal à :

$$\Delta E = \pm \mu_B H_0 \quad .$$

Cet écart d'énergie correspond à une pulsation

$$\omega_0 = \frac{\mu_B}{\hbar} H_0$$

où $\frac{\mu_B}{\hbar}$ est le rapport gyromagnétique (moment magnétique/moment angulaire total de l'atome)

et ω_0 la précession de Larmor autour de H_0 .

b) Si l'on se place dans un repère tournant à la pulsation ω' et suivant un plan perpendiculaire à H_0 , le champ statique vu par un observateur tournant sera égal à

$$(H_0 - \omega' \times \frac{\hbar}{\mu_B}) \qquad \text{(Figure 22)}$$

qui s'annule pour $\omega' = \omega$. Ainsi, pour étudier le comportement des atomes en présence de deux champs, l'un statique $\vec{H}_0$ et l'autre alternatif $\vec{H}_{RF} = \vec{H}_1 \cdot \cos \omega_{RF} t$ perpendiculaire à $\vec{H}_0$, il est plus commode de se placer sur un repère tournant à la fréquence ω_{RF} (le champ $\vec{H}_{RF}$

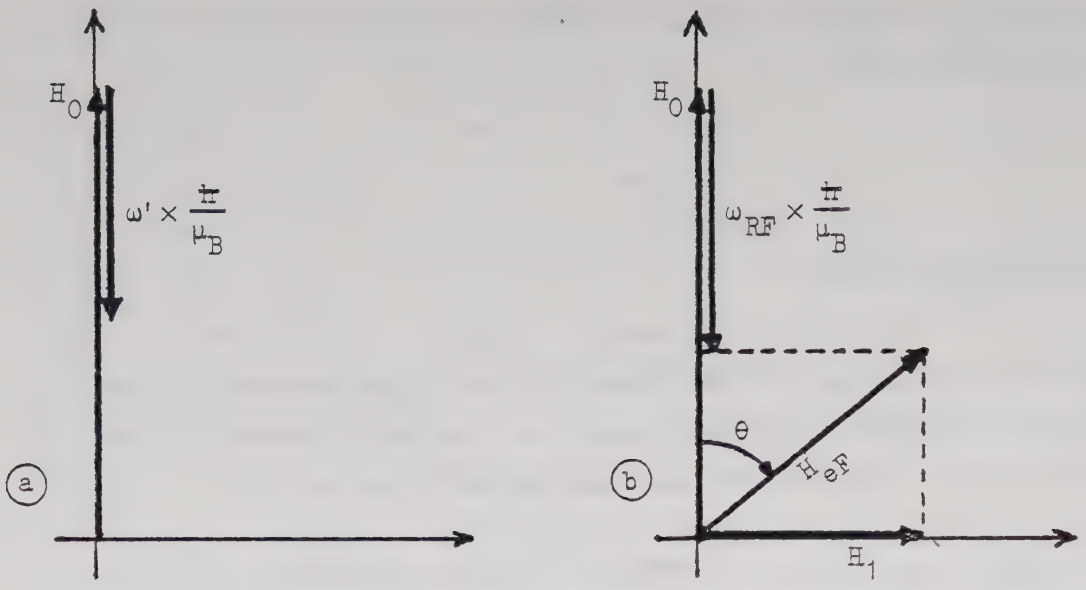


FIGURE 22

polarisé linéairement pouvant se décomposer en deux champs polarisés circulairement droite et gauche). La précession de Larmor se fera autour d'un champ effectif $\vec{H}_{eF}$ dont l'orientation fait un angle θ avec $\vec{H}_0$ (Figure 22). A la résonance magnétique ($\omega_{RF} = \omega_0$), θ est égal à $\frac{\pi}{2}$ et $\vec{H}_{eF}$ se réduit à $\vec{H}_1$. Dans ce repère tournant, la situation se ramène donc à celle d'un simple champ statique et la précession de Larmor parallèle à H_1 est égale à :

$$\omega_L = \frac{\mu_B}{\hbar} H_1 \quad .$$

c) Pour que la probabilité de transition $m_F=0 \rightarrow m_F=1$ ne soit pas trop faible, il faut que la précession du moment magnétique autour de H_1 soit comparable à la durée de vie τ du niveau excité pendant lequel l'atome peut voir son moment magnétique changer. On doit avoir typiquement $\omega_L \tau \approx 1$, soit :

$$\omega_L = \frac{\mu_B}{\hbar} \simeq \frac{1}{\tau} \quad ,$$

d'où l'on tire :

$$\boxed{H_1 \simeq \frac{h}{2\pi \mu_B \tau}}$$

avec $\frac{h}{\mu_B} = \frac{10^{-6}}{1,4}$ gauss/Herz

et $\tau = 3.10^{-9}$ seconde

On a : $H_1 \simeq 30$ gauss .

En fait, lorsque l'excitation du niveau supérieur est effectuée via un système à deux niveaux, comme c'est le cas dans les expériences faites sur les raies D_2 du sodium, l'atome est dans le niveau supérieur pendant la moitié de son temps de transit dans la zone d'interaction, ce qui rend le processus de double résonance beaucoup plus efficace. De ce fait un champ magnétique oscillant de l'ordre de 1 à 2 gauss est suffisant pour obtenir un signal de résonance observable dans de bonnes conditions.

7 - RESULTATS.

Les courbes de résonance enregistrées pour les isotopes 21, 25 - 29 du sodium sont représentées sur la Figure (23). La calibration de l'intensité du champ RF grâce à la courbe d'étalonnage permet d'obtenir des courbes bien symétriques. La valeur ν_{res} indiquée pour chaque isotope correspond à celle obtenue expérimentalement, c'est-à-dire en présence du champ magnétique directeur de 0,9 gauss (voir §.5, Chap. II). Le décalage Zeeman correspondant (proportionnel à μ_F et calculé exactement pour chacun des isotopes) est de l'ordre de 0,4 MHz. Le Tableau rassemble les valeurs mesurées expérimentalement, les valeurs corrigées en champ nul et celles des facteurs de couplage A et B déterminées pour chacun des isotopes.

La précision des mesures obtenues lors de ces expériences peut être comparée à celle obtenue par la méthode de spectroscopie optique pure, c'est-à-dire en balayant la fréquence du laser accordable et en enregis-

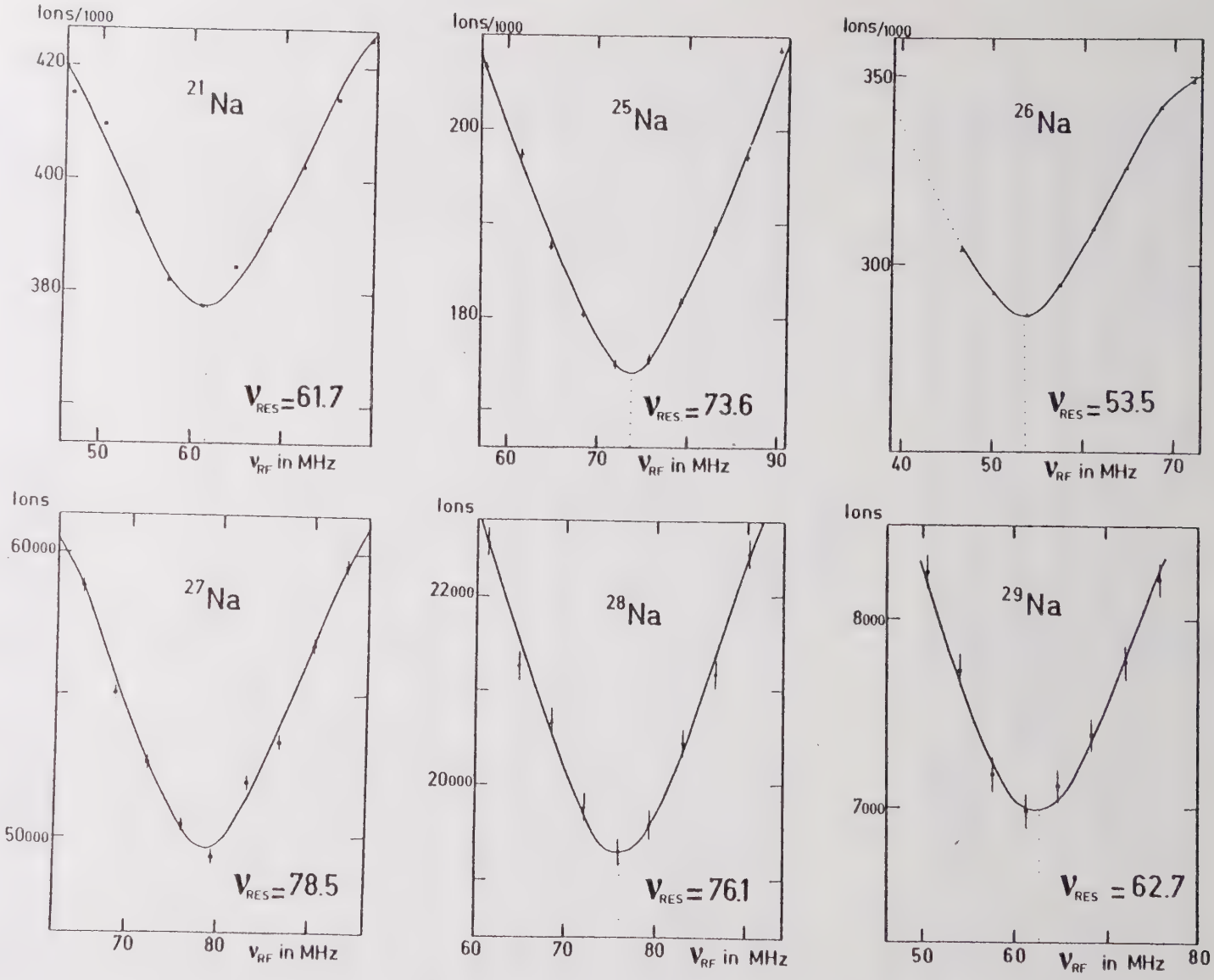


Figure 23

Courbes enregistrées par la méthode de double résonance pour 6 isotopes du sodium.

trant le profil de la structure du niveau excité $^2P_{3/2}$. Au début de ce chapitre, nous avons présenté (Fig. (14)) de tels enregistrements typiques pour les isotopes 21, 25, 26 et 27 du sodium . Après déconvolution de ces enregistrements, on obtient une valeur des écarts entre les trois niveaux $F' = I+3/2$, $F' = I+1/2$ et $F' = I-1/2$. Sur le Tableau (3) on a rassemblé uniquement les valeurs des écarts entre les composantes $F' = I+3/2$ et $F' = I+1/2$ pour chacun des isotopes (valeurs corrigées du décalage Zeeman dû au champ statique B_0 de 0,9 gauss) , ainsi que la valeur des facteurs A et B déduits des mesures optiques pures.

Pour le calcul du facteur $B\ (^2P_{3/2})$ donné par la relation

$$B\ (^2P_{3/2}) = 2I \left[\frac{\Delta\nu}{I+3/2} - A\ (^2P_{3/2})\right]$$

on utilise comme valeur de $A\ (^2P_{3/2})$ celle qui est la plus précise, c'est-à-dire celle déterminée à partir du rapport des facteurs A_{23} de l'isotope stable ; en effet l'anomalie hyperfine est négligeable à notre niveau de précision et l'on peut écrire :

$$A_x\ (^2P_{3/2}) = A_x\ (^2S_{1/2}) \times \frac{A_{23}\ (^2P_{3/2})}{A_{23}\ (^2S_{1/2})} \quad .$$

Le facteur $A_x\ (^2S_{1/2})$ est déterminé par des mesures optiques sur la raie D_1 [67] et le facteur $\dfrac{A_{23}\ (^2P_{3/2})}{A_{23}\ (^2S_{1/2})}$ à partir des valeurs les plus précises que l'on peut trouver dans la littérature :

$$A_{23}\ (^2P_{3/2}) = 18{,}65(10)\ \text{MHz}\ \ [66]$$

$$A_{23}\ (^2S_{1/2}) = 885{,}8130644(5)\ \text{MHz}\ \ [68] \ .$$

Nous voyons (Tableau 4) que les mesures effectuées par la méthode de double résonance sont plus précises (d'un facteur 2 à 3 environ) que celles obtenues par la méthode optique. On peut noter également la très faible valeur des facteurs $B\ (^2P_{3/2})$ pour chacun des isotopes. Ces va-

A	$\Delta\nu_o$ Opt. (MHz)	$A(^2P_{3/2})$ (MHz)	$B(^2P_{3/2})$ (MHz)
21	58,9(16)	19,2(5)	1,3(16)
25	70,7(25)	18,5(4)	-4,6(26)
26	48,5(45)	12,1(4)	-4,0(30)
27	76,6(25)	20,0(4)	-4,3(31)

TABLEAU 3

A	I	$\Delta\nu_{exp}$ (MHz) $H_o = 0,9$ Gauss	$\Delta\nu_o$ (MHz) ($H_o=0$) $F'=I+3/2 \longleftrightarrow F'=I+1/2$	$A(^2P_{3/2})$ (MHz) calculated	$B(^2P_{3/2})$ (MHz)
21	3/2	61,7(10)	61,4(10)	20,07(12)	1,2(11)
25	5/2	73,6(10)	73,1(10)	18,58(10)	-1,6(14)
26	3	53,5(10)	52,9(10)	12,00(7)	-1,5(14)
27	5/2	78,5(10)	78,0(10)	19,65(11)	-0,8(14)
28	1	76,1(10)	75,9(10)	30,60(18)	-0,4(9)
29	3/2	62,7(12)	62,4(12)	20,60(13)	0,6(13)

TABLEAU 4

leurs sont de l'ordre de grandeur (ou légèrement supérieures) aux barres d'erreur correspondantes. Ainsi l'analyse des paramètres de déformation que l'on peut déduire à partir du facteur B est délicate [17].

8 - PRECISION DE LA METHODE.

Dans la méthode de double résonance, la principale cause pouvant entraîner une erreur systématique sur la mesure de la fréquence de résonance entre les niveaux $F' = I+3/2$ et $F' = I+1/2$ provient du décalage éventuel de la fréquence optique avec celle de la transition $^2S_{1/2}\ (F = I+1/2) \longleftrightarrow {}^2P_{3/2}\ (F' = I+3/2)$. En effet, dans un jet atomique, la courbe de résonance est en fait une convention entre la fonction Doppler résiduelle du jet (liée à sa collimation) et la fonction lorentzienne de la résonance magnétique. Tout décalage de centrage entre ces deux courbes entraîne une erreur systématique d'autant plus grande que la largeur de la courbe Doppler résiduelle est plus faible (d'où l'intérêt supplémentaire de travailler avec un jet aussi ouvert que possible). Le calcul a été exposé dans la Réf. [69] pour une largeur Doppler résiduelle de 60 MHz. Il montre que dans notre cas le décalage δ_{RF} de la courbe de résonance par rapport au décalage δ_L de la fréquence du laser suit une loi linéaire et que la pente $\frac{\delta_{RF}}{\delta_L}$ est de l'ordre de 20%. La Figure (24) montre les pentes obtenues pour deux valeurs de la puissance du champ RF : la première donnant un signal d'amplitude crête égal à 17% du signal détecté sans champ RF (rapport S/F) et la seconde correspondant à une amplitude de l'ordre de 9%. Compte tenu du signal optique détecté lors de l'étude de la raie D_2 , Fig. (14), on peut considérer que la fréquence du laser peut être centrée sur la transition $^2S_{1/2}\ (F = I+1/2) - {}^2P_{3/2}\ (F' = I+3/2)$ à mieux que 5 MHz près environ. Le déplacement correspondant de la courbe de résonance RF est alors de l'ordre de 1 MHz, Fig. (24) ; nous avons adopté cette valeur comme étant la limite supérieure des erreurs que l'on peut commettre avec cette méthode de double résonance.

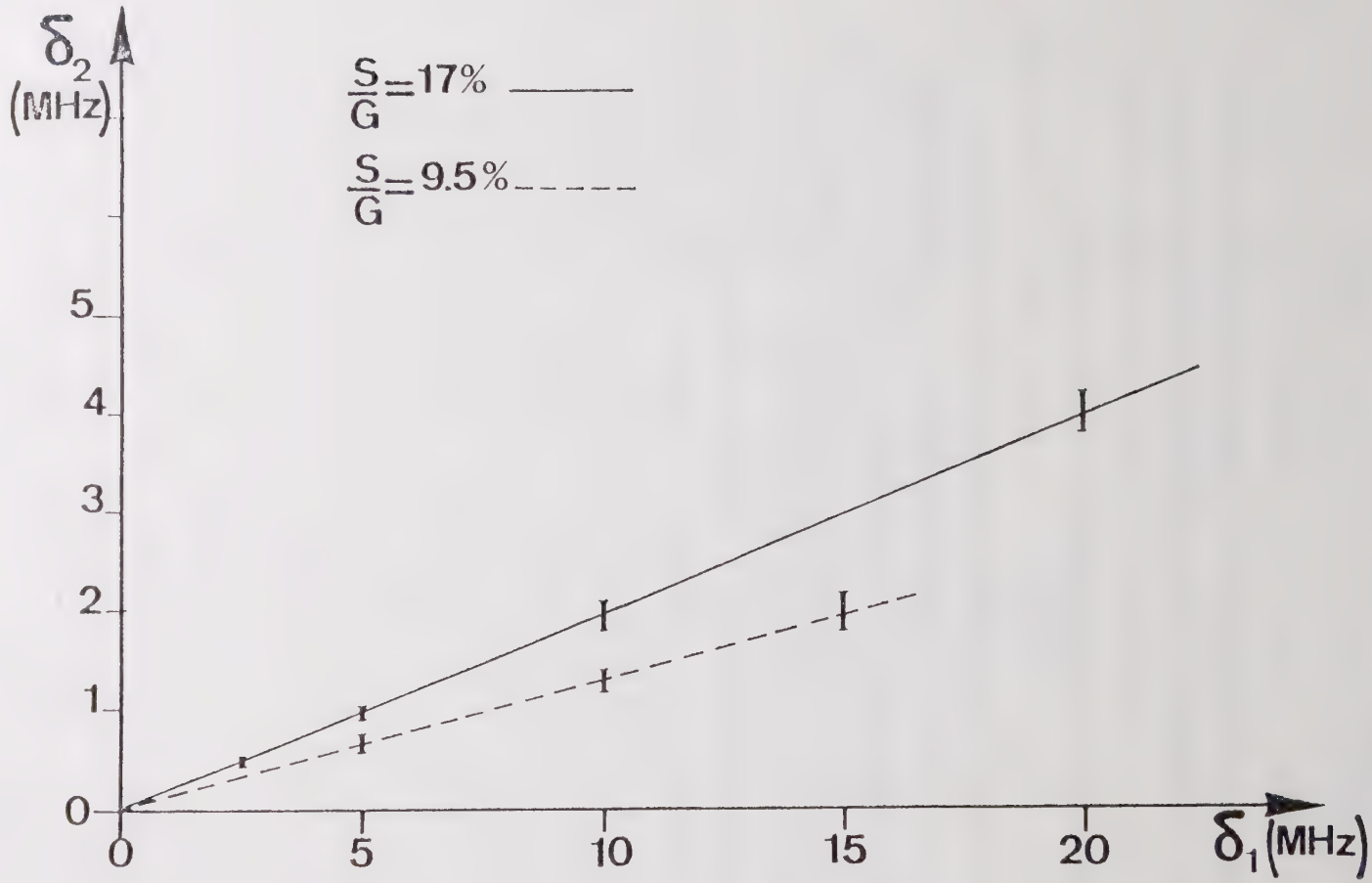


Figure 24

Déplacement calculé δ_2 de la courbe de résonance en fonction du désaccord δ_1 de la fréquence du laser par rapport à la transition de résonance.

CONCLUSION.

La méthode de détection des résonances optiques, particulièrement sensible, que nous avons utilisée pour l'étude des isotopes radioactifs d'alcalins, a permis l'étude de longues chaînes d'isotopes produits, pour les plus instables d'entre eux, en quantité aussi petite que 10^5 atomes par seconde (à ISOLDE) ou par impulsion de 10^{13} protons (ou PS). Ainsi de nombreux résultats ont été obtenus sur les isotopes de sodium, potassium, rubidium, césium et francium. La raie de résonance D_2 de ce dernier élément a pu être mesurée pour la première fois grâce à cette méthode expérimentale.

Les mesures d'écarts relatifs de fréquence entre différentes composantes hyperfines des raies D_1 et D_2 étudiées au cours de ces expériences ont permis le calcul de nombreux paramètres nucléaires. Ces écarts ont été calibrés pour la plupart d'entre eux grâce à l'utilisation d'un sigmamètre simplifié.

Certains paramètres nucléaires, comme ceux qui caractérisent les déformations des noyaux, ont peu d'influence sur les niveaux d'énergie des atomes et nécessitent, pour être calculés, des mesures précises à mieux que 1 MHz environ. Si les conditions de l'expérience le permettent, cette précision correspond à celle atteinte par notre instrument, mais celle-ci dépend également d'autres facteurs comme le rapport signal sur bruit des raies enregistrées, leur largeur Doppler résiduelle ou la largeur spectrale de la structure des niveaux $^2S_{1/2}$, $^2P_{1/2}$, $^2P_{3/2}$.

Ainsi la structure du niveau fondamental $^2S_{1/2}$ du francium est de l'ordre de 42 GHz plus grande que l'intervalle spectral balayé de façon continue par la fréquence du laser à colorant. L'enregistrement de cette structure a donc nécessité deux balayages consécutifs dont le raccordement a pu être effectué grâce au sigmamètre.

La structure du niveau $^2P_{3/2}$ des isotopes de sodium n'étant pas résolue, une méthode de double résonance a été utilisée. Elle a permis de mesurer l'écart d'énergie entre les niveaux $F' = (I+3/2)$ et $F' = (I+1/2)$ avec une précision deux fois, voire trois fois, meilleure que celle obtenue par la méthode purement optique.

CONCLUSION GENERALE

PERSPECTIVES.

L'utilisation du sigmamètre s'est révélée un instrument particulièrement commode pour les expériences de spectroscopie atomique ou moléculaire utilisant des lasers accordables. Il permet non seulement de mesurer la fréquence de ces lasers fonctionnant en continu ou en impulsions avec une précision de l'ordre de 5.10^{-9} (3 MHz), mais peut également asservir et piloter leur fréquence avec une très bonne linéarité et déterminer des écarts de fréquences avec une précision de l'ordre de 10 MHz.

Cet instrument a déjà été utilisé dans de très nombreuses expériences. Dans un proche avenir, d'autres expériences de spectroscopie atomique vont être entreprises au C.E.R.N. et concernent la mesure de la raie D_1 ($7s\ ^2S_{1/2} - 7p\ ^2P_{1/2}$) du francium et l'étude de sa structure hyperfine sur une série d'isotopes de cet élément. L'étude de la raie D_2 sera également reprise mais cette fois du côté des isotopes riches en neutrons.

Il semble bien établi que des mesures analogues effectuées sur des isotopes d'atomes à nombres pairs de protons apporteraient des renseignements complémentaires sur la structure nucléaire.

Pour cette raison, une nouvelle opération concernant l'étude spectroscopique des gaz rares est engagée ; cependant elle nécessite la mise en oeuvre de nouvelles méthodes expérimentales : nouvelles méthodes de détection, nouvelles sources laser, ...

BIBLIOGRAPHIE

[1] O. G. PETERSON, S. A. TUCCIO et B. B. SNAVELY, Appl. Phys. Lett. 17, 245 (1970).

[2] P. H. LEE et M. L. SKOLNICK, Appl. Phys. Lett. 10, 303 (1967).

[3] C. WIEMAN et T. W. HÄNSCH, Phys. Rev. Lett. 36, 1170 (1976).

[4] H. T. DUONG, P. JACQUINOT, S. LIBERMAN, J. L. PICQUÉ, J. PINARD et J. L. VIALLE, Opt. Commun. 7, 371 (1973).

[5] J. E. M. GOLDSMITH, E. W. WEBER et T. W. HÄNSCH, Phys. Rev. Lett. 41, 1525 (1978).

[6] S. R. AMIN, C. D. CALDWELL et W. LICHTEN, Phys. Rev. Lett. 47, 1234 (1981).

[7] R. DE SERIO, H. G. BERRY, R. L. BROOKS et J. HARDIS, Phys. Rev. A 24, 1872 (1981).

[8] R. L. BARGER, J. L. HALL, Phys. Rev. Lett. 22, 4 (1969).

[9] K. M. EVENSON, J. S. WELLS, F. R. PETERSEN, B. L. DANIELSON, G. W. DAY, R. L. BARGER, J. L. HALL, Phys. Rev. Lett. 29, 1346 (1972).

[10] G. NOWICKI, K. BEKK, S. GÖRING, A. HANSER, H. REBEL et G. SCHATZ, Phys. Rev. C 18, 2369 (1978).

[11] J. L. HALL, L. HOLLBERG, T. BAER et H. G. ROBINSON, Appl. Phys. Lett. 39, 680 (1981).

[12] P. JUNCAR, Thèse de 3ème cycle, Orsay (1976).
Brevet : P. JUNCAR et J. PINARD
"Procédé et dispositif de détermination d'ondes de rayonnements optiques et application à l'asservissement de Lasers".
Brevet ANVAR n° 74.27.583 étendu aux U.S.A. sous le n° 630.028.

[13] S. G. NILSSON, Dan. Vid. Selsk. Mat. Fys. Medd. 29, n° 16 (1955).

[14] J. BONN, G. HUBER, H. J. LUGE et E. W. OTTEN, Z. Phys. A 276, 203 (1976).

[15] J. L. VIALLE, Thèse à l'Université d'Orsay (1980).

[16] F. TOUCHARD, Thèse à l'Université d'Orsay (1981).

[17] J. M. SERRE, Thèse de 3ème cycle, Orsay (1981).

[18] P. GUIMBAL, Thèse de 3ème cycle, Orsay (1981).

[19] J. L. HALL et S. A. LEE, Appl. Phys. Lett. 29, 367 (1976).

[20] J. CACHENAUT, C. MAN, P. CEREZ, A. BRILLET, F. STŒCKEL, A. JOURDAN et F. HARTMANN, Rev. de Phys. Appl. 14, 685 (1979).

[21] F. V. KOWALSKI, R. E. TEETS, W. DEMTRODER et A. L. SCHAWLOW, J. Opt. Soc. Am. 68, 1611 (1978).

[22] N. KONISHI, T. SUZUKI, Y. TAIRA, H. KATO et T. KASUYA, Appl. Phys. 25, 311 (1981).

[23] J. J. SNYDER, Laser Spectr. III, Springer-Verlag, 419 (1977).

[24] F. MOUSSELY, Thèse d'Ingénieur-Docteur, Orsay (1982)

[25] J. C. OWENS, Appl. Opt. 6, 51 (1967).

[26] J. Ch. GILLE, P. DECAULNE, M. PELEGRIN, Théorie et calcul des asservissements linéaires, Dunod (1971).

[27] A. A. MICHELSON et J. R. BENOIT, Travaux et Mémoires du Bureau International des Poids et Mesures, XI (1894).

[28] W. G. SCHWEITZER, Jr., E. G. KESSLER, Jr., R. D. DESLATTES, H. P. LAYER et J. R. WHETSTONE, Appl. Opt. 12, 2927 (1973).

[29] S. J. BENNETT, P. CEREZ, J. HAMON et A. CHARTIER, Metrologia 15, 125 (1979).

[30] G. CAMY, B. DECOMPS, J. L. GARDISSAT et C. J. BORDÉ, Metrologia 13, 145 (1977).

[31] S. J. BENNETT et P. GILL, J. Phys. E : Sci. Instrum. 13, 174 (1980).

[32] Doc. CCDM/73-11, NRC, 5e session (1973).

[33] V. KAUFMAN et L. MINNHAGEN, J. Opt. Soc. Am. 62, 92 (1972).

[34] J. PINARD et S. LIBERMAN, Opt. Commun. 20, 344 (1977).

[35] H. KOGELNIK et T. LI, Proceed. of the IEEE 54, 1312 (1966).

[36] P. CEREZ et S. J. BENNETT, Appl. Opt. 18, 1079 (1979).

[37] P. BUCK et I. I. RABI, Phys. Rev. 107, 1291 (1957).

[38] F. TOUCHARD, P. GUIMBAL, S. BÜTTGENBACH, R. KLAPISCH, M. DE SAINT SIMON, J. M. SERRE, C. THIBAULT, H. T. DUONG, P. JUNCAR, S. LIBERMAN, J. PINARD et J. L. VIALLE, Phys. Lett. B 108, 169 (1982).

[39] N. BENDALI, H. T. DUONG, J. L. VIALLE, J. Phys. B : At. Mol. Phys. 14, 4231 (1981).

[40] H. BETHE et E. SALPETER, Quantum Mechanics of one and two electron atoms, Springer Verlag, 318 (1957).

[41] E. GIACOBINO et F. BIRABEN, à paraître dans J. Phys. B, Juin (1982).

[42] F. BIRABEN, B. CAGNAC et G. GRYNBERG, Phys. Lett. 49A, 71 (1974).

[43] S. GERSTENKORN et P. LUC, Atlas du spectre d'absorption de la molécule de l'iode entre 14800 et 20000 cm^{-1}, Editions du C.N.R.S. (1978).

[44] Y. ACCAD, C. L. PEKERIS et B. SCHIFF, Phys. Rev. A 11, 1479 (1975).

[45] A. ERMOLAEV, Progress in Atomic Spectroscopy, ed. W. Hanle et H. Kleinpoppen, Plenum N.Y., 149 (1978).

[46] L. F. MOLLENAUER, Opt. Lett. 5, 188 (1980) ;
G. TRENOC, P. J. NACHER, M. LEDUC, Soumis à Opt. Commun.

[47] G. BREIT et I. I. RABI, Phys. Rev. 38, 2082 (1931).

[48] W. GERLACH et O. STERN, Ann. Phys. 76, 163 (1925).

[49] A. LEMONICK, F. M. PIPKIN et D. R. HAMILTON, Rev. Sci. Inst. 26, 1112 (1955).

[50] G. BENNEWITZ et W. PAUL, Z. Physik 139, 489 (1954).

[51] J. BAUCHE, R. J. CHAMPEAU, dans "Advances in Atomic and Molecular Physics", Academic Press, N.Y. 12, 39 (1976).

[52] C. E. MOORE, Atomic Energy Levels, Circular of the NBS, 467 (1958).

[53] P. PEREY, C. R. Acad. Sci. 208, 97 (1939).

[54] H. YAGODA, Phys. Rev. 40, 1017 (1932).

[55] J. F. WYART, Communication privée.

[56] K. T. BAINBRIDGE, Phys. Rev. 34, 752 (1929).

[57] H. YAGODA, Phys. Rev. 38, 2298 (1931).

[58] S. LIBERMAN et al., Communication privée.

[59] A. C. MUELLER, Diplomarbeit, Mainz (R.F.A.) (1977).

[60] H. J. KLUGE, Communication privée.

[61] M. AYMAR, Communication privée.

[62] M. AYMAR, Communication privée.

[63] J. M. DESCLAUX, Thèse à l'Université de Paris (1971).

[64] N. F. RAMSAY, Molecular Beams, Oxford at the Clarendon Press, 1969.

[65] H. G. KUHN, "Atomic Spectra", Longmann, London (1969).

[66] D. SCHÖNBERNER et D. ZIMMERMANN, Z. Phys. 216, 172 (1968).

[67] G. HUBER, F. TOUCHARD, S. BÜTTGENBACH, C. THIBAULT, R. KLAPISCH, H. T. DUONG, S. LIBERMAN, J. PINARD, J. L. VIALLE, P. JUNCAR et P. JACQUINOT, Phys. Rev. C 18, 2342 (1978).

[68] A. BECKMANN, K. D. BÖKLEN, D. ELKE, Z. Phys. 270, 173 (1974).

[69] F. TOUCHARD, J. M. SERRE, S. BÜTTGENBACH, P. GUIMBAL, M. DE SAINT SIMON, C. THIBAULT, H. T. DUONG, P. JUNCAR, S. LIBERMAN, J. PINARD et J. L. VIALLE, Phys. Rev. C 25, 2756 (1982).

[70] A. BRILLET, Thèse à l'Université d'Orsay (1976).

ANNEXE IV

PHYSICAL REVIEW C VOLUME 18, NUMBER 5 NOVEMBER 1978

Spins, magnetic moments, and isotope shifts of $^{21-31}$Na by high resolution laser spectroscopy of the atomic D_1 line

G. Huber,† F. Touchard, S. Büttgenbach,†† C. Thibault, and R. Klapisch
Laboratoire René Bernas du Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse, 91406 Orsay, France

H. T. Duong, S. Liberman, J. Pinard, J. L. Vialle, P. Juncar, and P. Jacquinot
Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II, 91405 Orsay, France
(Received 22 June 1978)

A polyisotopic sodium beam produced by reactions of 20 GeV protons in an uranium target, was illuminated with a tunable cw dye laser. The atomic beam is analyzed by a six-pole magnet, ionized, and detected after selection of one isotope by use of a mass spectrometer. From the optical D_1 resonance lines the hyperfine structure, magnetic moments, and isotope shifts of $^{21-31}$Na have been determined. The nuclear spins of $^{26-30}$Na have been measured by magnetic resonance. The results are discussed in terms of nuclear deformation. The analysis of isotope shifts shows the presence of an appreciable volume shift contribution.

[NUCLEAR STRUCTURE $^{26-30}$Na; measured J. $^{21-31}$Na; measured isotope shifts; deduced μ. Atomic beam laser spectroscopy and magnetic resonance.]

I. INTRODUCTION

The study of nuclear masses of exotic, neutron-rich sodium isotopes by on-line mass spectrometry had shown irregularities in the two neutron binding energy at $N = 20$, which can be interpreted in terms of nuclear deformation.[1,2] Within the framework of a more detailed investigation of these isotopes, new mass measurements,[3] β-, γ-spectroscopy measurements,[4] and the present optical measurements have been performed at the proton synchrotron (P.S.) at CERN. Spins, magnetic moments, and isotope shifts of a long sequence of isotopes are of obvious interest to nuclear structure. At present full s-d shell calculations using different effective forces are available[5] and also Hartree-Fock calculations using a Skyrme effective force have been published on these nuclei.[2] Both calculate binding energies and spins or deformation parameters, respectively. But, to our knowledge, no magnetic moment calculations on neutron-rich sodium isotopes have been reported.

In this detailed report on the optical investigations we present in Sec. II the principle of the experiment, in Sec. III the experimental set up, in Sec. IV the experimental procedure, and in Sec. V the results and their interpretation using the Nilsson model and the classical theory of isotope shift.

II. PRINCIPLE OF THE EXPERIMENT

The experimental set up uses a method of non-optical detection of optical resonances by means of magnetic deflection. This method has been developed and applied to $^{21-25}$Na at Orsay.[6-8] A target, placed inside a high temperature oven, is bombarded with a proton beam. The thermalized reaction products are emitted from the oven and form an atomic beam [Fig. 1(a)]. In the 1 region the sodium atoms may be excited by a light beam of a cw tunable single mode dye laser, in presence of a small magnetic field. At optical resonance with one of the well resolved hyperfine components of the D_1 line, hyperfine optical pumping occurs and changes the population distribution between the magnetic substates m_F. The atomic states pass adiabatically from the weak field region (interaction region) to the strong field region (inside the six-pole magnet), where I and J are decoupled. The atoms have then $m_J = +\frac{1}{2}$ or $m_J = -\frac{1}{2}$. The six-pole magnet (2 region) focuses the atoms with $m_J = +\frac{1}{2}$ and defocuses the atoms with $m_J = -\frac{1}{2}$. A signal proportional to the number of focused atoms of the studied sodium isotope is obtained by counting them with an electron multiplier after they have been ionized and passed through a mass spectrometer. The signals observed when scanning the laser frequency are shown in Fig. 1(b).

In this experiment, the light propagates along the direction of a small magnetic field H_0 perpendicular to the atomic beam. The field is small enough so that the total width of the Zeeman splitting of the line is smaller than 10 MHz, the natural line width. Π excitation is excluded. The calculation of the optical pumping for σ excitation is complicated because of coherence effects. The theory for the simple case of pure polarization (σ^- or σ^+) is given in Appendix A. A program has been written to compute the evolution of the populations using the optical pumping matrix from Appendix A. For $I = \frac{3}{2}$(^{23}Na) the result as a function of $W \cdot t$, W being the light power density and

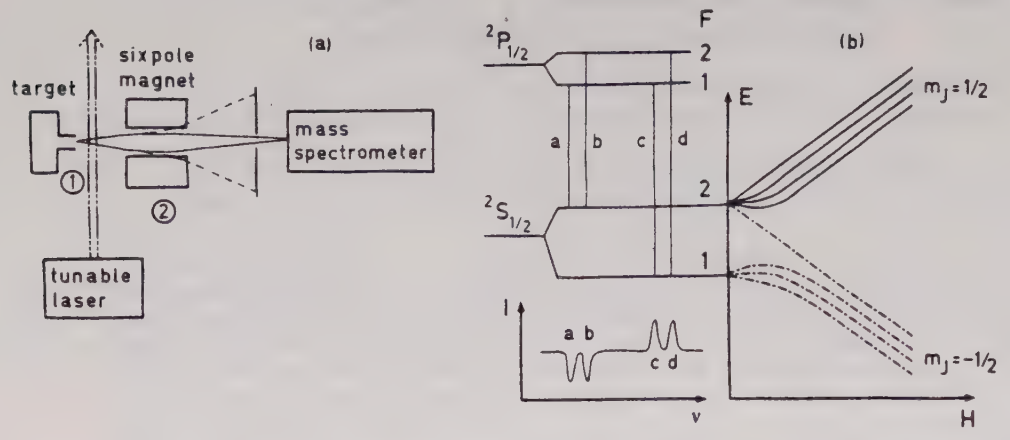


FIG. 1. (a) Scheme of the experiment. (b) Signals with the D_1 line for $I=\frac{3}{2}$.

t the interaction time, is shown in Fig. 2. From this figure if can be seen that there is a value of W for which the resonance signal approaches its asymptotic value. An increase in W would only broaden the resonance signal. The optimal value of W depends on the light polarization and on the hyperfine component, as well as on the nuclear spin. Therefore, ideally, W should be adjusted for each case. Since in practice a light power density range around the optimal value can be tolerated, we used , for reasons of time sparing, the same value of a few mW/cm^2 which is in the tolerable range of all cases (see Fig. 2).

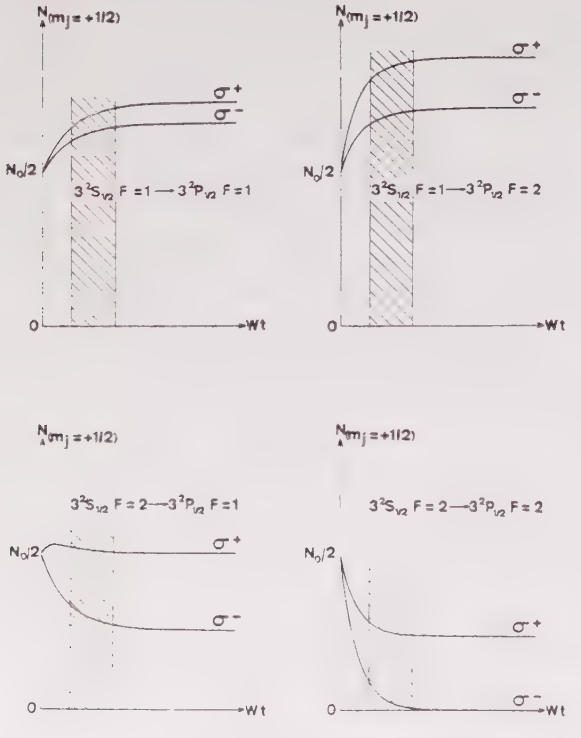


FIG. 2. Optical pumping with polarized light.

In order to determine the nuclear spin I we used the well known magnetic resonance method. The laser light is polarized σ^- and frequency locked to the hyperfine transition $^2S_{1/2}, F=I+\frac{1}{2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$, $F'=I+\frac{3}{2}$. Zeeman pumping occurs and the populations of the ground state sublevels are changed. The atoms involved in this transition are pumped in the Zeeman sublevel $m_F=-(I+\frac{1}{2})$ of the $F=I+\frac{1}{2}$ hyperfine ground state. Consequently all atoms are defocused by the six-pole magnet. A rf field perpendicular to the static field H_0 is applied to the optically pumped atoms. If the rf frequency is equal to the frequency of the transition between two adjacent Zeeman sublevels, the rf field tends to equalize the populations of all Zeeman sublevels since H_0 is weak enough for the Zeeman effect to be linear. In our case, the population of the $m_F=-(I+\frac{1}{2})$ sublevel is redistributed into Zeeman sublevels of the $F=I+\frac{1}{2}$ hyperfine ground state. The transferred atoms are focused by the six-pole magnet and the detected signal increases.

The transition frequency between two adjacent Zeeman sublevels in weak magnetic field H_0 is given by

$$\nu = g_F \mu_B H_0/h$$

where

$$g_F = \frac{F(F+1)+J(J+1)-I(I+1)}{2F(F+1)} g_J .$$

A term in g_I has been neglected in this expression, since $g_I \ll g_J$. In the case $J=\frac{1}{2}, g_J=2$ the transition frequency is

$$\nu = \frac{2\mu_B H_0}{(2I+1)h} .$$

For a given rf frequency ν_{rf} and for each possible value of I there is a value of H_0 for which the

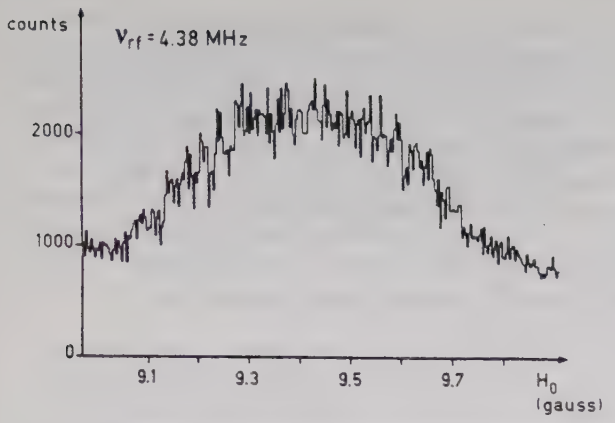


FIG. 3. Magnetic resonance signal for spin measurement of ^{25}Na.

transmitted beam intensity must increase

$$H_0 = \frac{\nu_{rf} h(2I+1)}{2\mu_B} .$$

The nuclear spin I is measured by checking which of these discrete values of H_0 produces an increase of the signal. The signal obtained on ^{25}Na by sweeping the magnetic field H_0 is shown in Fig. 3. The same Zeeman pumping effect occurs in the D_1 line, although the signal at rf resonance is smaller. Since the D_1 line was used for hyperfine structure and isotope shift measurements, it was more convenient to use the D_1 line also for the spin measurements.

III. APPARATUS

A. The uranium target and the atomic beam set up

It is now well known that neutron-rich light nuclei can be produced by bombarding an uranium target with high energy protons (see e.g. Refs. 9, 10). The target structure has already been described,[10] and the cross sections for the production of sodium isotopes have been measured.[10,11] A thin layer of ^{238}U is deposited on graphite foils. The recoil fragments produced by the nuclear reactions are implanted into the graphite. There, a chemical separation is achieved by the selective diffusion of the alkali atoms through the graphite as they come out of the target very quickly and form a thermal atomic beam.

Uranium dioxide powder from a suspension in amyl-acetate is sedimented (≈15 mg/cm^2) on graphite foils 50 μm thick and 45 × 5 mm^2 surface. 20 foils, separated by 100 μm graphite spacers, were glued into a stack with two 500 μm cover foils of graphite (Fig. 4). After sintering by heating up to 2000°C in vacuum, the stack was inserted in the tantalum oven. It was placed with the 4 × 5 mm^2 face toward the proton beam. According to recoil energy measurements,[9] about 60% of the produced sodium should be transferred to the graphite foils. The oven consists of a 300 μm thick tantalum foil rolled to form an 8 mm diameter and 50 mm long cylinder. Current connections are spotwelded at the top leads. In the middle of this tube a 3 mm diameter tube was spotwelded at right angle as an atomic beam exhaust. In order to increase the directivity of the emission of atoms, 3 collimating channels, 1 mm diameter and 20 mm long were inserted in the beam exhaust tubing. The exhaust tubing is provided with a current connection so that separate heating of the main part of the oven and the outlet tubing is possible. After heating to 2000°C, no change in the initial alignment of the oven, with respect to both the proton beam and the atomic beam axis was observed, due to the symmetrical and flexible construction of the current connections which support the oven. The purpose of the high temperature is to allow a fast diffusion of the sodium atoms through the graphite and the exhaust tubing. This allows us to study the short-lived sodium isotopes with $A \geq 28$ (see Sec. III E).

The region where the atoms interact with the laser light was magnetically shielded. The small static magnetic field H_0 was produced by a solenoid placed inside the shielding. The rf field was produced by a 10 turns solenoid centered on the atomic beam axis. Care has been taken to maintain a small field of the same direction than H_0 inside the magnetic shielding in order to avoid nonadiabatic transitions.

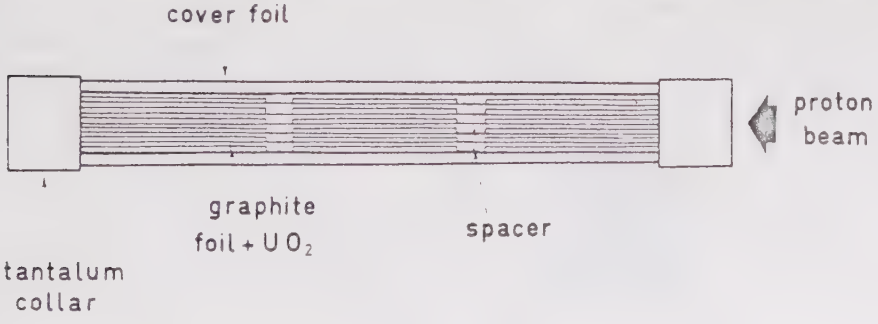


FIG. 4. Schematic view of the uranium graphite target.

B. The dye laser

Since contributions of the volume effect in the isotope shift were expected to be of the order of a few MHz, the frequency of the D_1 line had to be measured with an accuracy of about 10^{-8}. For this purpose we built a frequency controlled dye laser system. As in previous experiments[7,8] this system comprised a "sigmameter"[12] which permits us both to stabilize the laser frequency and to scan it step by step with increments as small as 1 MHz.

The general scheme of the set up is shown in Fig. 5. A commercial dye laser system (CR 599) operated on one single mode whose frequency is locked using a reference Fabry-Perot cavity. The frequency jitter is less than 1 MHz; it is continuously tunable over a range of 30 GHz. But the stability is only 10 MHz per hour, so that a more stable reference is needed. For this purpose a small part of the laser light is sent into the sigmameter, which consists of a Michelson type interferometer with a fixed path difference of $\delta = 200$ cm, which is servocontrolled by use of a wavelength standard laser line. The common phase of the two normalized interference signals $\sin\phi$ and $\cos\phi (\phi = 2\Pi\sigma\delta)$, provided by the sigmameter, can be vizualized on a X-Y scope (Fig. 5), and by electronic comparison with a reference phase an error signal for the CR 599 frequency control system is generated. Thus the laser frequency, i.e., its wave number σ is stabilized on the sigmameter: the reference phase can be scanned in discrete steps of $\Delta\phi = 2\Pi \times p/160$, where p is a chosen integer. The minimum increment ($p = 1$) is then $\Delta\sigma = 1/160.200$ cm^{-1} or $\Delta\nu = 0.9375$ MHz. In order to obtain a good optical stability of the sigmameter a Koster prism has been used for the multiple functions of beam splitter, compensator plate, mirror, and dephasing element, as one face of the prism has a reflective metal coating (see Fig. 5). The second mirror of the interferometer is mounted 1 m apart from the Koster prism by means of invar spacers and a piezoceramic stack.

A He-Ne laser locked on an iodine saturated absorption line is used to servocontrol the path difference δ. The He-Ne laser light path inside the interferometer is parallel to the dye laser light. The interference fringes generate an error signal in a servoloop acting on the piezoceramic stack of the second mirror. The stability of the whole system has been studied using the D_1 line of stable sodium (^{23}Na) whose hyperfine structure is known very accurately. This experiment is done by detecting the fluorescence signal from a well collimated atomic beam which is illuminated with the laser light. The results have shown a stability over several hours as well as a reproducibility of better than 1 MHz. This fluorescence signal of natural sodium was used as a reference frequency for the isotope shift measurements of $^{21\text{-}31}$Na.

To avoid first order Doppler frequency shifts of the resonance due to deviation from perfect perpendicularity between the atomic beam and the laser beam axis, the light was reflected back on itself on the radioactive atomic beam as well as on

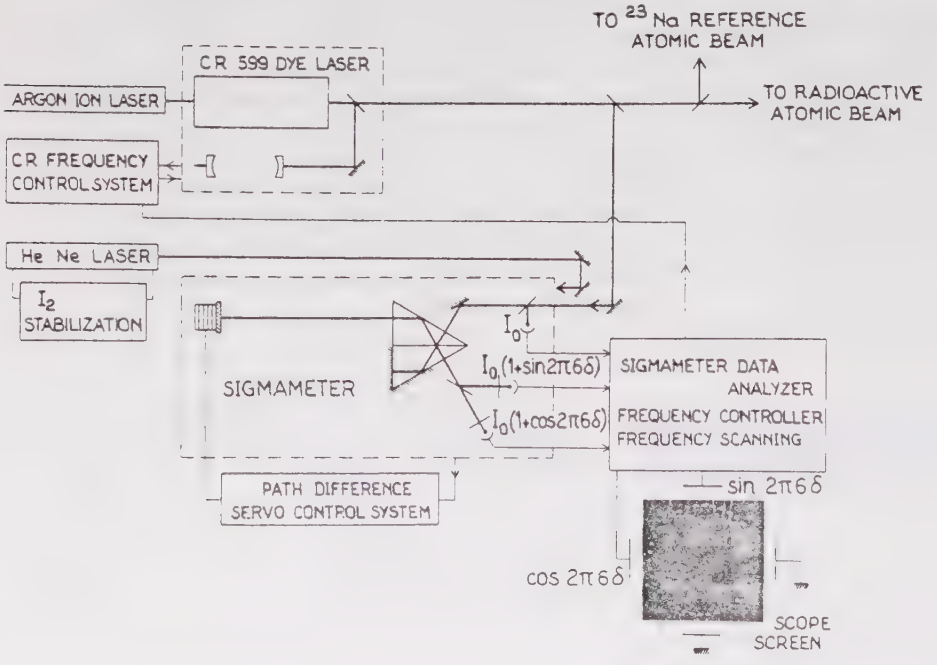


FIG. 5. General scheme of the laser set up.

the reference ^{23}Na beam. However, the retroreflection is not perfect in order to avoid light reflection into the dye laser. From the achieved angle between the two light beams we have found that a residual frequency shift of about ±1 MHz was to be expected. In fact, the systematic error introduced by this residual shift in the mean value of the isotope shift measurements is less than 1 MHz, due to different settings of retroreflection.

C. The six-pole magnet

We used two commercial six-pole magnets in series as magnetic state selector, each with 9300 Gauss at the pole tips, 8.6 cm length and 0.32 cm gap diameter. Calculating the transmission as described in Appendix B, a program has been written to determine the optimal value for L, assuming that the sodium atoms emerging from the oven are themalized at 2000 °K. We found with $L = 6$ cm the separation parameter s, defined in Appendix B, to be 80%, and the effective solid angle to be 4.5 10^{-4}sr, about three times the solid angle defined by the magnet exit and the beam source. Taking into account the dimension of the oven aperture, the collimation of the beam is 40, leading to a width of the optical resonance of about 70 MHz. The observed width is somewhat larger (100 MHz) due to saturation of the optical pumping process.

D. The mass spectrometer

After the interaction with the laser beam and the state analysis through the six-pole magnet, the alkali isotopes are separated by a mass spectrometer. The required ionization—achieved by a rhenium surface ionizer—reinforces the chemical selection, since the alkali metals are well known for their low ionization potential when compared to neighboring elements. Since the ionization potential of sodium 5.14 eV is comparable to the work function of rhenium 5.1 eV only about 30% of the atoms can be ionized. To increase the ionization efficiency a small flow of oxygen was continuously directed on the ionizer. This led to the formation of rhenium oxide and thus brought the ionization efficiency close to unity.[13] This was achieved by a controlled air leak near the ion source. The mass spectrometer has an inhomogeneous field (angle $\Phi = 90°$, field index $n = 0.23$, radius $R = 35$ cm) providing a resolving power which may be adjusted to values ≤ 650. Its transmission has been measured using a chopped atomic beam of ^{23}Na. The ratio of the intensities before the ionizer (i.e., the source of the spectrometer) and at the detector placed at the end of the ion transport line is measured to be 50–75%, for a mass resolution $M/\Delta M$ of the order of 300.

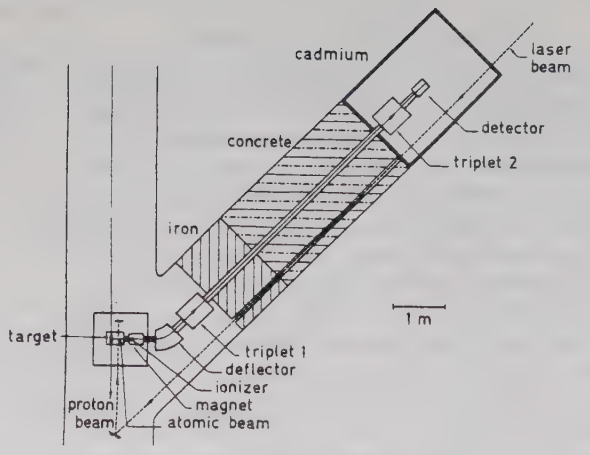


FIG. 6. Overall view of the experimental area.

The beam at the P.S. consists of very short (2.1 μs) pulses of 10^{12}–10^{13} protons, separated by at least 2.4 s. Due to this high intensity, the level of radiation background is very high while its decay is exponential ($T_{1/2} \approx$ some ms). In order to be able to detect very short-lived isotopes with low counting rates (for ^{31}Na : $T_{1/2} = 15$ ms and about 3 counts/pulse), the mass selected ions had to be conducted to a detection area which was separated from the target area by a thick shielding (Fig. 6) giving an attenuation of 10^5–10^6 for the background. Furthermore, it was located in a cadmium shielded cage, the purpose of which was to absorb thermalized neutrons, so that the exponential decay was cut off.

E. Total efficiency of the system

From the total thickness of uranium in the target (≈3.4 g/cm^2), the number of protons per pulse and the known cross sections (14 mb for ^{25}Na), the number of produced atoms can be calculated. For ^{25}Na one finds about 10^9 atoms per pulse while the observed number of ions is 10^4. This corresponds to an overall efficiency of 10^{-5}, which is consistent with the value that one obtains using the different reducing factors discussed above and assuming that about 50% of the atoms are extracted from the graphite.

For the sodium isotopes with $A \geq 28$, which have half lives shorter than 60 ms, one has to take into account the delay time between the production of the nucleus and its detection. This delay is due to the diffusion time of the atoms from the graphite and to the ionization time in the mass spectrometer source. A typical time interval for collecting 50% of the ions is 200 ms. The loss due to this delay is about a factor of 7 for a half life of 20 ms (^{31}Na).

IV. EXPERIMENTAL PROCEDURE

Since the optical resonances appear as peaks on a fluctuating base signal, it seemed to be necessary to have a normalization procedure for the beam intensity. Two different normalization procedures have been performed: one with the proton beam intensity and another one with a sodium isotope of the atomic beam. Both normalizations were, however, only 10–20% reliable. The normalization on the proton beam, by measuring the beam intensity using an electrostatic pick up, is subject to error since the production of sodium isotopes depends also upon the focusing of the proton beam on the target oven. The normalization between two sodium isotopes during the same measuring sequence allowed a comparison of the counting rate of a short-lived isotope at the beginning of the diffusion curve with the counting rate of a longer-lived isotope (^{25,26}Na) at the end of its diffusion curve (Fig. 7). But the value of this normalization procedure is limited to about 10% accuracy since for the longer-lived isotopes, counts due to atoms produced during preceding proton pulses were also taken into account.

In practice, the measuring sequence was started by a synchronization pulse from the P.S. preceding the proton pulse by 20 ms. Two ms after the proton pulse, when the background of fast particles had disappeared, ions of the mass A were recorded during a period of 20–300 ms depending on the half life of the isotope. Then, the voltage of the mass spectrometer and the ion beam transport line were set for the longer-lived isotope A' and a measuring period of 1–2 s was started. The corresponding counting rates were stored in buffer counters together with the digitalized fluorescence signal of the ^{23}Na reference beam, the signal of the proton beam intensity from the electrostatic pick up, and the scanning signal of the laser frequency. By a preset counter 1 to 100 cycles could be summed up in the buffer counters for a fixed frequency of the laser. In order to select the best timing for an optimum signal to noise ratio for the A signal, three channels with different counting times were used. The data of the buffer counters were transferred into memories, then read by a PDP 15 computer for analysis of the data and writing on magnetic tapes. Every spectrum started with the recording of at least two resonances of ^{23}Na from the reference atomic beam. Then the laser frequency was changed to allow the recording of the resonances of the sodium isotopes A and A' with an appropriate number of counting cycles per laser step.

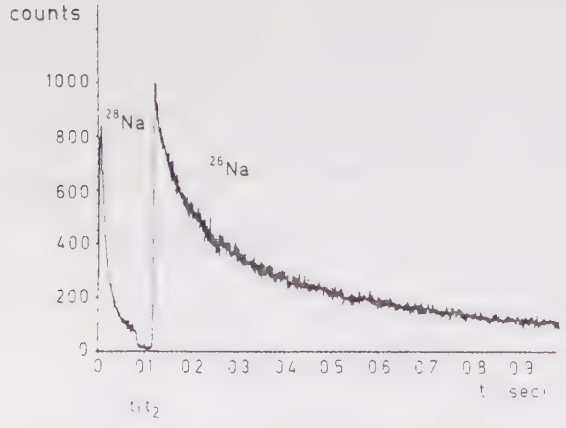


FIG. 7. Diffusion curves for 30 ms ^{28}Na and 1s ^{26}Na. At instant t_1 the mass spectrometer and the ion transport line were changed from mass 28 to mass 26. At instant t_2 counting of mass 26 was started.

V. RESULTS AND DISCUSSION

A. Spins

The spins determined by magnetic resonance for $^{26-30}$Na are given in Table I. Because of lack of time, the spin for ^{31}Na has not been measured by the magnetic resonance method. The spin assignment for ^{31}Na is based on the value of the hyperfine structure and the isotope shift which indicate that $I=\frac{3}{2}$ is the most probable value. For prolate deformations the eleventh proton should occupy the $\Omega=\frac{3}{2}[211]$ Nilsson model orbit[14] leading to the ground state spin $I=\Omega=\frac{3}{2}$ for the odd isotopes. In the spherical limit the unpaired proton occupies the $d_{5/2}$ shell model orbit and the ground state spin should be $I=\frac{5}{2}$. From this we conclude that spin $\frac{5}{2}$ is a strong indication of an almost spherical nucleus (^{25,27}Na) and that spin $\frac{3}{2}$ indicates prolate deformation (^{21,23,29,31}Na). Assuming for the neutrons the normal filling order of the Nilsson model orbits for prolate deformations (see Fig. 8) the spins of the even isotopes can be explained, except for ^{30}Na. If we take only s-d orbits into account, spin 2 for ^{30}Na can be explained assuming a filled $\frac{3}{2}$ [202] orbit and the unpaired neutron being in the $\frac{1}{2}$ [200] orbit.

B. Magnetic moments

From the observed signals—typical examples are shown in Fig. 9—we first determined the center of gravity of each hyperfine component of the line using a computer program written for the PDP 15. The hyperfine splitting constants A for both the ground state and the excited state derived from this evaluation are given in Table I and are compared to other results when available.

The magnetic moments of $^{26-31}$Na were calculated from the A factor of the $^2S_{1/2}$ ground state neglecting hyperfine anomaly effects

TABLE I. Spins, hyperfine structure, magnetic moments, and isotope shifts of $^{21-31}$Na. The quoted errors for results of the present work are one standard deviation.

^{x}Na	$T_{1/2}$ [a]	I	$A(^2S_{1/2})$ (MHz)	μ_I (μ_N) corrected	$A(^2P_{1/2})$ (MHz)	$IS^{23,x}$ (MHz)
^{21}Na	22.5 s	$\frac{3}{2}$[b]	953.7(2.0)		102.6(1.8)	−1596.7(2.3)
			953.233(11)[c]	2.38612(10)[c]		
^{22}Na	2.60 y	3[b]	349.3(1.0)		37.5(1.0)	−756.9(1.9)
			348.75(1)[d]	1.746(3)[d]	37.0(1)[e]	−758.5(7)[e]
^{23}Na	stable	$\frac{3}{2}$[b]	885.8130644(5)[f]	2.2175203(22)[f]	94.25(15)[e]	
^{24}Na	15.02 h	4[b]	253.2(2.7)		28.2(2.7)	706.4(6.2)
			253.185018(23)[g]	1.6902(5)[g]		
^{25}Na	60.0 s	$\frac{5}{2}$[b]	882.7(9)		94.5(5)	1347.2(1.3)
			882.8(1.0)[h]	3.683(4)[h]		
^{26}Na	1.07 s	3	569.4(3)	2.851(2)	61.0(3)	1397.5(9)
^{27}Na	290 ms	$\frac{5}{2}$	933.6(1.1)	3.895(5)	100.2(1.1)	2481.3(2.0)
^{28}Na	30.5 ms	1	1453.4(2.9)	2.426(3)	156.0(2.7)	2985.8(2.7)
^{29}Na	43 ms	$\frac{3}{2}$	978.3(3.0)	2.449(8)	104.4(3.0)	3446.2(3.8)
^{30}Na	53 ms	2	624.0(3.0)	2.083(10)	66.2(2.8)	3883.5(6.0)
^{31}Na	17 ms	$\frac{3}{2}$	912(15)	2.283(38)		2486(16)

[a] F. W. Walker, G. J. Kirouac, and F. M. Rourke, Chart of the Nuclides, 12th edition, revised to April 77, distributed by Educational Relations, General Electric Company, Schenectady, N. Y. 12345.

[b] V. S. Shirley and C. M. Lederer, in *Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay* edited by E. Karlsson and R. Wäppling (Almquist and Wiksell, Stockholm, 1975).

[c] O. Ames, E. A. Phillips, and S. S. Glickstein, Phys. Rev. 137, B1157 (1965).

[d] L. Davis Jr., D. E. Nagle, and J. R. Zacharias, Phys. Rev. 76, 1068 (1949).

[e] K. Pescht, H. Gerhard, and E. Matthias, Z. Phys. A281, 199 (1977).

[f] A. Beckmann, K. D. Böklen, and D. Elke, Z. Phys. 270, 173 (1974).

[g] Y. W. Chan, V. W. Cohen, and M. Lipsicas, Phys. Rev. 150, 933 (1966); V. W. Cohen, Bull. Am. Phys. Soc. 18, 727 (1973).

[h] M. Deimling, R. Neugart, and H. Schweikert, Z. Phys. A273, 15 (1975).

$$\mu = \mu_{23} \frac{I}{I_{23}} \frac{A}{A_{23}} \quad .$$

The values used for the A factor and the magnetic moment of the reference isotope ^{23}Na are also quoted in Table I. As pointed out above, no theoretical values for the magnetic moments have been reported up to now. Therefore we attempted an interpretation of the magnetic moments in the framework of the Nilsson model[14] using for odd isotopes

$$\mu_I = \frac{I}{I+1}\left[\frac{1}{2}(g_s - g_l) \times \sum_i (\alpha_{i\,\Omega=1/2}{}^2 - \alpha_{i\,\Omega=1/2}{}^2) + g_l I + g_R\right]$$

and for even isotopes

$$\mu_I = \frac{I}{I+1}\left\{\left[\Omega_p + \frac{1}{2}(g_s^p - g_l^p)\sum_i (\alpha_{i\,\Omega=1/2}{}^2 - \alpha_{i\,\Omega=1/2}{}^2)^p\right] \pm \left[\frac{1}{2} g_s^n \sum_i (\alpha_{i\,\Omega=1/2}{}^2 - \alpha_{i\,\Omega=1/2}{}^2)^n\right] + g_R\right\},$$

where the sign of the second term is the same as the sign of Ω_n appearing in the coupling rule $I = \Omega_p \pm \Omega_n$. In the calculation we used $g_s^p = 5.59$, $g_l^p = 1$, $g_s^n = -3.83$, and $g_R = Z/A$. The coefficients $\alpha_{i\,\Omega\pm1/2}$ were taken from Ref. 14. The results are plotted in Fig. 8. Except for ^{25,26,27}Na the magnetic moments are consistent with a positive deformation. For the proton state $\frac{5}{2}$[202] (^{25}Na and ^{27}Na) the calculated moment is deformation independent. But in the case of ^{26}Na the moment indicates an almost spherical shape. It should, however, be noted that the magnetic moments are very sensitive to admixtures of other states to the ground state wave function, therefore the values of the corresponding deformation parameter η, indicated in Fig. 8, have only a limited significance.

C. Isotope shifts

Using the already determined hyperfine structure constants and the nuclear spins the determination of the center of gravity of the D_1 line is straightforward. The results with respect to ^{23}Na are given in the last column of Table I. The consis-

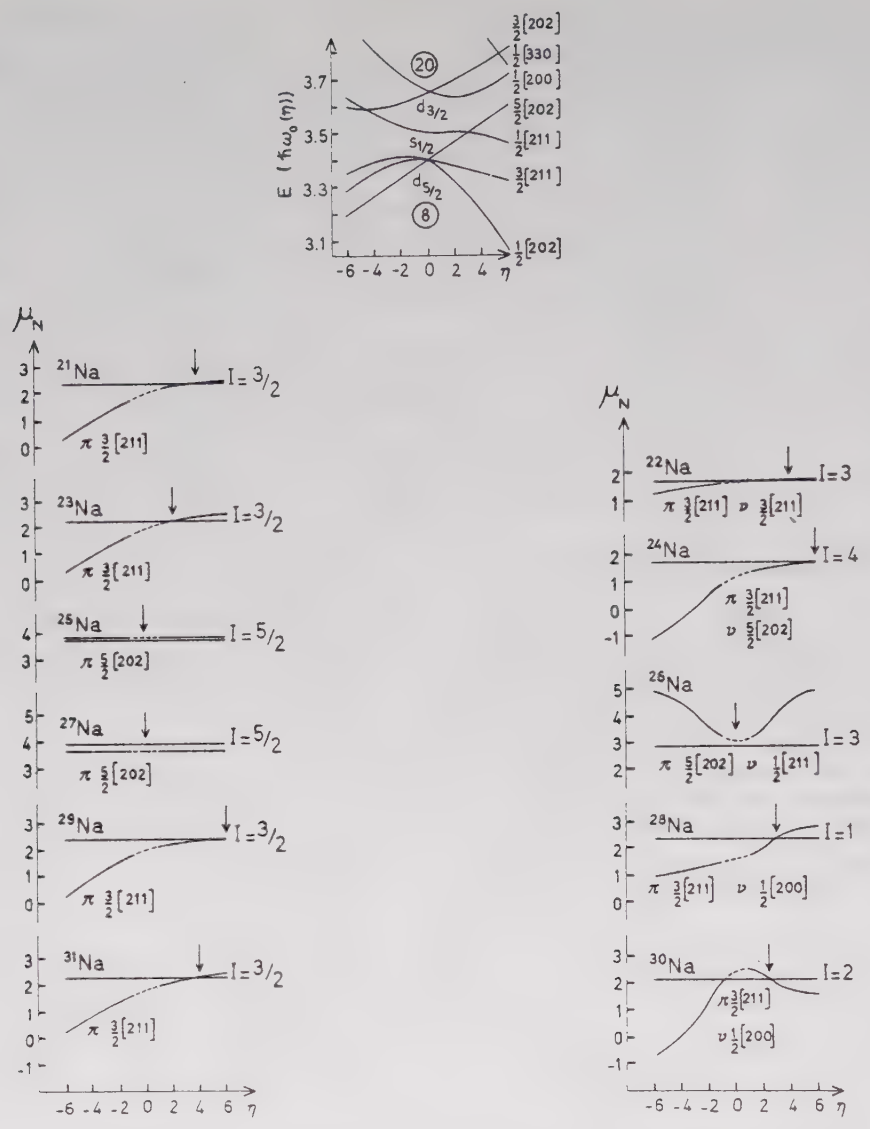


FIG. 8. Nilsson diagram for odd particle levels (Ref. 14), and nuclear magnetic moments of $^{21-31}$Na as functions of the deformation parameter η. The experimental magnetic moments are plotted as straight lines parallel to the η axis, while the Nilsson graph is dashed near the region of zero deformation.

tency between the values of the isotope shift obtained from each of the four hyperfine components of the line was taken into account in the error evaluation. As seen on Table I, the resulting accuracy stands generally between 1 and 3 MHz, which may be considered as characteristic of the experimental set up. In some cases (^{24,30,31}Na) this accuracy was not obtained, owing to occasional difficulties. Because of its 15 h half life, ^{24}Na produces a rather high background when implanted in the first dynode of the electron multiplier, keeping from making further measurements on rarer isotopes. Thus only one measurement was performed on it, and further measurements were planned for the end of the run. But unfortunately this experiment could not be done. In the cases of ^{30,31}Na, the obtained accuracy is not so much due to the low counting rates (10 and 3 counts/pulse, respectively) related to the low production cross sections than to an accidental contamination by hydrocarbons. This means that a new set of measurements could improve the results for these three isotopes very much.

The measured isotope shift is the sum of two effects: the mass shift and the volume shift. The former is divided into a normal mass shift that can be calculated exactly, and a specific mass shift that cannot be calculated with reasonable precision. But both have the same dependence on the nuclear masses

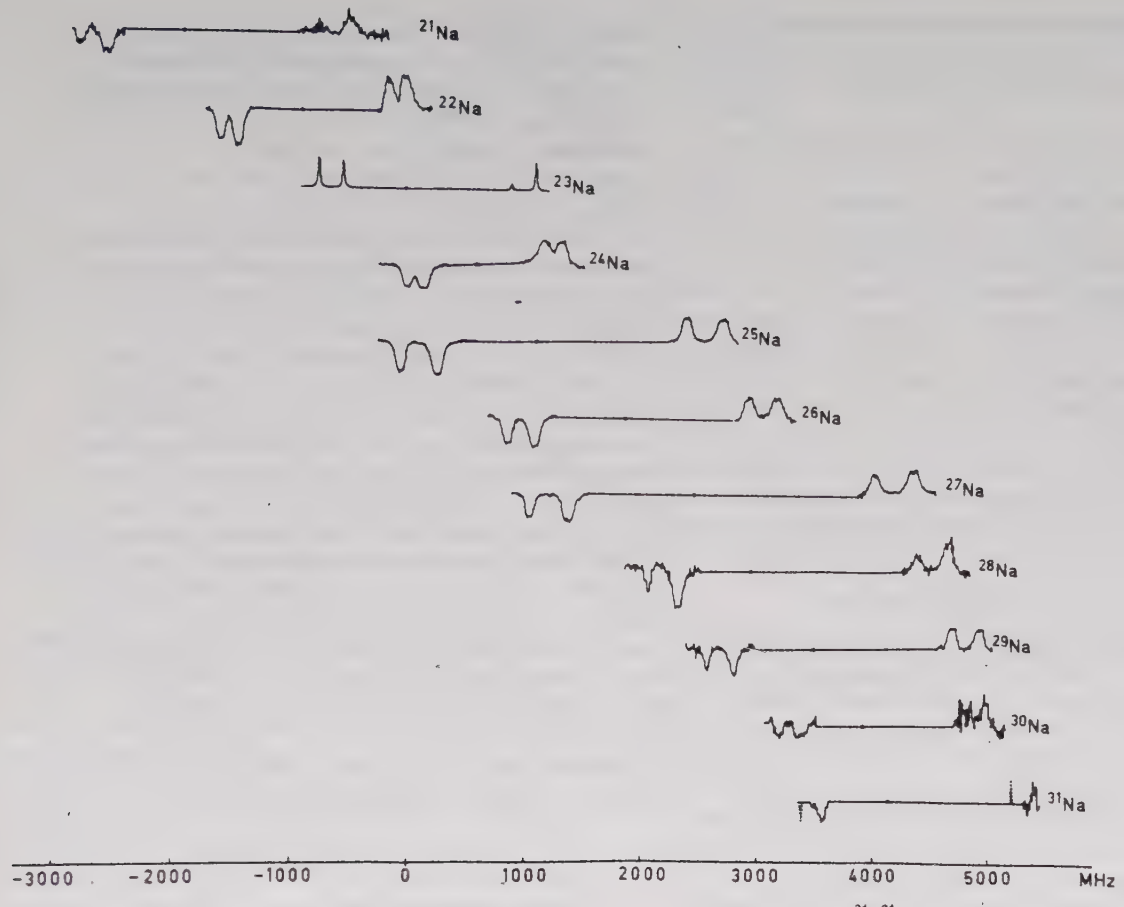


FIG. 9. Hyperfine structure and isotope shifts of $^{21-31}$Na.

$$\delta\nu_{\text{mass}}^{AA'} = K\frac{M_{A'} - M_A}{M_{A'}M_A} \quad ,$$

where M_A and $M_{A'}$ are the nuclear masses in atomic mass units and K is the unknown mass shift constant. The volume effect or change in the mean square radius of the nuclear charge distribution has no such mass dependence. For the D_1 line this effect is essentially sensitive for the s electron and may be written

$$\delta\nu_{\text{vol}}^{AA'} \simeq F\,\delta\langle r^2\rangle^{AA'} \quad ,$$

where $\delta\langle r^2\rangle^{AA'}$ is the change in the charge radius and

$$F = (\Pi a_0{}^3\beta\,|\Psi_s(0)|^2/Z)f(Z) = Ef(Z) \, .$$

$f(Z)$ which takes into account the relativistic corrections to E as well as the finite nuclear charge distribution can be calculated using a formula derived by Babushkin.[15] $|\Psi_s(0)|^2$ is the charge density of the s electron at the nucleus, and a_0 is the Bohr radius. β is a screening factor due to the change in the wave functions of inner closed shell electrons by the valence electron as it changes from $s_{1/2}$ to $p_{1/2}$. β has been determined by Bauche using the Hartree-Fock technique[16]: $\beta = 1.1 \pm 0.1$.

For the light elements the volume shift is not only very small compared to the mass shift but in many cases also negligibly small compared to the experimental errors. Up to now calcium has been the lightest element in which a volume effect has unambiguously been observed.[17-19] Therefore, in the first step of the analysis we only looked for evidence of volume effect contributions to the observed isotope shifts. For this purpose the quantity $\delta\nu_{\text{obs}}^{23,A} M_{23} M_A/(M_A - M_{23})$ has been plotted versus the mass number A (Fig. 10). If the observed isotope shifts were due to a pure mass effect the plotted quantity should be a constant. Therefore we conclude from Fig. 10 that there are volume shift contributions to the isotope shifts well outside the experimental error limits.

The volume shift can also be divided into two parts: the normal volume effect and a deformation effect. For a given change in neutron number the change in nuclear charge radius due to the normal volume effect should be almost constant along the

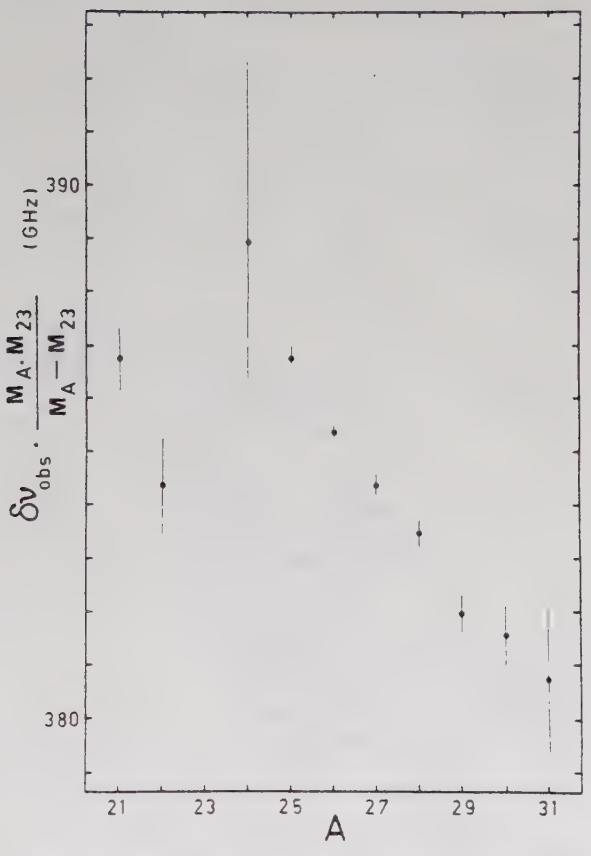


FIG. 10. Evidence of volume effect contributions to the isotope shift of sodium isotopes.

sequence of isotopes of one element, while the deformation effect is proportional to the nuclear deformation and therefore not regular. From Hartree-Fock calculations[2] as well as from the spin $\frac{5}{2}$ of ^{25}Na and ^{27}Na and from the magnetic moment of ^{26}Na, we tentatively make the assumption that for ^{26,27}Na the volume shift with respect to ^{25}Na can be described by the normal volume effect

$$\delta\nu_{vol}^{AA'} = F \times \zeta \times \delta\langle r^2\rangle_{std}^{AA'} ,$$

where

$$\delta\langle r^2\rangle_{std}^{AA'} = \tfrac{2}{5} r_0^2 \delta A / \bar{A}^{1/3}$$

and

$$\delta A = A' - A, \bar{A} = (A + A')/2 .$$

$\delta\langle r^2\rangle_{std}$ is the change of nuclear charge radii for uniformly charged sphere of standard radius $R = r_0 A^{1/3}$ ($r_0 = 1.2$ fm). $\zeta \leq 1$ is the so-called isotope shift "discrepancy" describing the fact that the radius of the nuclear charge distribution of a spherical nucleus increases less rapidly than $A^{1/3}$ when neutrons are added. This can be understood in terms of the dependence of the proton potential on the neutron excess.[20] Since for the present case ζ is unknown, we performed the following calculations for $\zeta = 1$ and for $\zeta = 0.5$ which should be the upper and lower limit as it has been found for elements with $Z \geq 19$.[21,22] $\zeta \approx 0.5$ is also consistent with Hartree-Fock calculations.[2]

From the hyperfine structure of the ground state of ^{23}Na we find $|\psi_s(0)|^2 = 0.75 a_0^{-3}$ and $E = 0.326$; $f(Z) = -199$ MHz/fm^2 is calculated from an expression given by Babushkin,[15] and as the final result for the volume shift constant we obtain $F = -47$ MHz/fm^2. From the isotope shifts of $^{25-27}$Na we then find the mass shift constant $K = 388$ GHz for $\zeta = 1$ and $K = 385$ GHz for $\zeta = 0.5$, and using the mass factors $(M_{A'} - M_A)/M_{A'} \cdot M_A$, the volume shift for the other isotopes was evaluated. The results are shown in Fig. 11. Both curves show the same general trend: deviations from the lines $\delta\langle r^2\rangle_{std}$ and $\frac{1}{2}\delta\langle r^2\rangle_{std}$ respectively, for the light isotopes $^{21-24}$Na as well as for the heavy isotopes starting with ^{28}Na. It should be noted that these deviations would be true for any reasonable value of ζ. They can be interpreted as an effect of nuclear deformation. For the light isotopes such a deformation is already well documented (see, e.g., Refs. 20, 23).

Although this analysis of the isotope shifts is based on rough assumptions it should give the

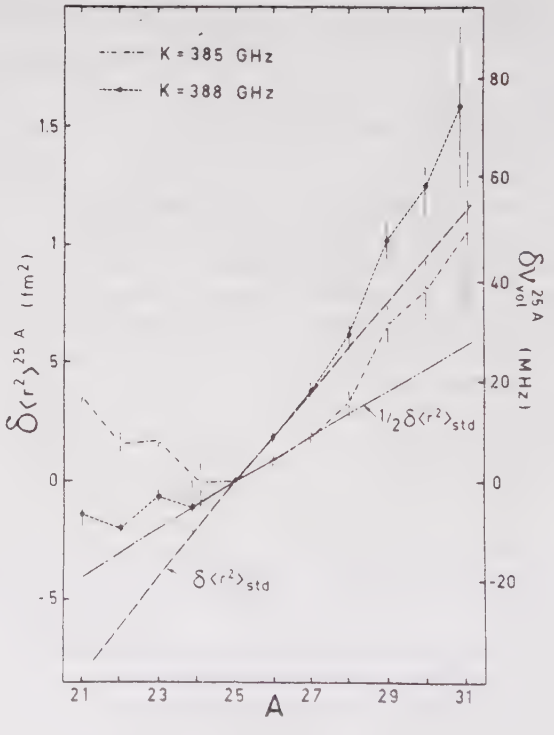


FIG. 11. Differences of mean square nuclear charge radii with respect to ^{25}Na for two values of the mass effect constant K. The error bars are due only to the experimental uncertainties.

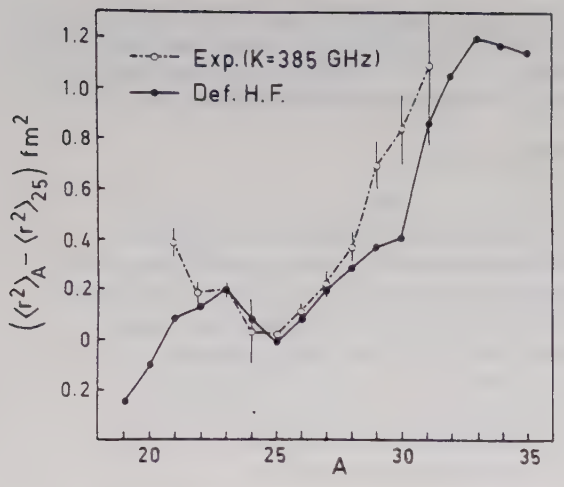


FIG. 12. Comparison of experimental values for the change in the mean square nuclear charge radius (for K = 385 GHz) and of values obtained from deformed Hartree-Fock calculations (from Ref. 2.).

right order of magnitude for the specific mass shift. For the isotope pair 23-25 we obtain from K = 385 GHz a total mass effect of 1341 MHz, and after subtracting the normal mass shift which can be calculated exactly (see, e.g., Ref. 18) we find a specific mass shift of about 370 MHz which is large compared to a theoretical value of 60 MHz calculated with the Hartree-Fock technique.[24] The mean square charge radii extracted from the isotope shift data can be compared to values derived from deformed Hartree-Fock calculations.[2] The $\delta\langle r^2\rangle$ values obtained when assuming an isotope shift "discrepancy" $\zeta = 0.5$ are in good agreement with the calculated ones for $^{23-28}$Na and ^{31}Na. Between ^{28}Na and ^{31}Na the experimental curve increases more monotonically than the theoretical curve which shows a sudden increase at ^{31}Na (see Fig. 12).

VI. CONCLUSION

The present investigation extends the data on spins and magnetic moments to the sodium isotopes $^{26-31}$Na. The comparison to Nilsson model calculations gives some estimates on nuclear deformation. From the precise determination of the isotope shift of the D_1 line of the isotopes $^{21-31}$Na, clear evidence of volume shift contributions is obtained. The interpretation in terms of nuclear charge radius changes also gives information on nuclear deformation, although there remains the uncertainty introduced by the specific mass effect. The information on nuclear deformation extracted from the isotope shifts is in agreement with those obtained from spins and magnetic moments. Indeed, the spins and magnetic moments as well as the charge radii indicate prolate deformation for $^{21-24}$Na, lying in an already well established region of positive deformation, and also for $^{28-31}$Na, while $^{25-27}$Na may be considered as having almost spherical nuclei.

To check this analysis of nuclear deformation, further measurements are required. Measurements in the neighboring elements Mg and Ne should exhibit a similar structure of the nuclear radius changes. A determination of the static quadrupole moments of the sodium isotopes by measuring the hyperfine structure of the D_2 line is planned and should give further information on nuclear deformation. An improved accuracy in the ^{30}Na and ^{31}Na isotope shift measurements and an extension to ^{32}Na (for which according to the production cross section only 0.2 counts per proton pulse are expected) should clarify the structure in the changes of charge radii around the neutron number $N = 20$.

ACKNOWLEDGMENTS

It is a pleasure to acknowledge the able assistance of R. Fergeau, M. Jacotin, and J. F. Kepinski in building and setting up the mass spectrometer, and related equipment and shielding, as well as maintaining it during the run. We are indebted to C. Vialle for the excellent contribution in maintaining a stable laser operation. We thank G. Le Scornet for writing the computer programs on PDP 15, B. Rosenbaum for building the data acquisition system, J. Biderman and D. Barbet for making the target and ionizer, and R. Baronnet for building the ^{23}Na reference atomic beam apparatus. We thank A. Ball, J. M. Michaud, J. Zaslavsky, and all the members of the Experimental Facilities Division and of the P.S. staff for maintaining the high intensity proton beam. One of us (S.B.) wishes to acknowledge receipt of a fellowship from the Deutsche Forschungsgemeinschaft.

APPENDIX A: PRINCIPLE OF CALCULATIONS OF THE OPTICAL PUMPING

For the hyperfine component $^2S_{1/2}, F - {}^2P_{1/2}, F'$ of the D_1 line the evolution of the populations of the Zeeman sublevels of the ground state is given by the equations

$$\frac{dp_m}{dt} = -p_m \sum_M (1 - E_{Mm}) \frac{A_{mM}}{T_p} + \sum_M \sum_{m' \neq m} \frac{E_{Mm} A_{m'M}}{T_p} p_{m'}$$

$$\frac{dp_{\bar{m}}}{dt} = \sum_M \sum_m \frac{E_{M\bar{m}} A_{mM}}{T_p} p_m ,$$

where the quantum numbers m and M denote the Zeeman sublevels of the hyperfine levels F and F', respectively, and $\bar{m}$ denotes the sublevels of the ground state hyperfine level not involved in

the transition. A_{mM}/T_p is the absorption probability per unit time, where

$$A_{mM} \propto \begin{pmatrix} F & 1 & F' \\ -m & q & M \end{pmatrix}^2 (2F+1)(2F'+1) \begin{Bmatrix} F & 1 & F' \\ J' & I & J \end{Bmatrix}^2 ,$$

with $q = \pm 1$ for σ^- or σ^+ light. The pumping rate $1/T_p$ is proportional to the light power density W.[25] E_{Mm} is the emission probability from the excited sublevel M to the ground state Zeeman sublevel m. We normalize the E_{Mm} as

$$\sum_m E_{Mm} + \sum_{\bar{m}} E_{M\bar{m}} = 1 .$$

APPENDIX B: TRANSMISSION OF THE SIX-POLE MAGNET

In the strong magnetic six-pole field the nuclear spin and the electronic angular momentum are decoupled. The sodium atoms have either $m_J = +\frac{1}{2}$ or $m_J = -\frac{1}{2}$ with the corresponding effective magnetic moment $\mu_{eff} = \pm\mu_B$. Then it can be shown[26] that in the inhomogeneous six-pole field, in which the atoms are submitted to a radial force, the atoms with $m_J = +\frac{1}{2}$ follow a sinusoidal trajectory and those with $m_J = -\frac{1}{2}$ an hyperbolic one.

The angular frequency of the harmonic oscillation depends on μ_{eff}, on the atomic mass m, and on the characteristics of the magnet used. The transmission of the six-pole magnet is conveniently described by the transmission solid angles Ω^+ and Ω^- for $m_J = \pm\frac{1}{2}$. To calculate these quantities we follow the considerations developed in Ref. 26

$$\Omega^*(\eta) = \Pi[X_0^*(\eta)]/L ,$$

where $X_0^*(\eta)$ is the maximum transverse entrance coordinate insuring that throughout the magnet length the transverse deviation is smaller or equal to the magnet radius gap. $X_0^*(\eta)$ is calculated from the equation of motion. L is the distance from the atomic beam source to the magnet entrance. η is defined as $\eta = \alpha\sqrt{2}/V$, $\alpha = (2kT/m)^{1/2}$. $\Omega^-(\eta)$, for atoms in the state $m_J = -\frac{1}{2}$ is similarly defined. The efficiency of the six-pole magnet as a state selector is defined by a parameter s

$$s = \frac{N^+ - N^-}{N^+ + N^-} ,$$

where

$$N^\pm \propto \int_0^\infty F_{\text{beam}}(\eta)\Omega^\pm(\eta)d\eta .$$

$F_{\text{beam}}(\eta)$ is the beam velocity distribution. N^+ and N^- are the number of transmitted atoms in the state $m_J = +\frac{1}{2}$ and $m_J = -\frac{1}{2}$, respectively, averaged over the velocity distribution of the beam.

---

†Presently at Gesellschaft für Schwerionenforschung—D 6100 Darmstadt 1, Germany
‡On leave from University of Bonn, Bonn, Germany

[1]C. Thibault, R. Klapisch, C. Rigaud, A. M. Poskanzer, R. Prieels, L. Lessard, and W. Reisdorf, Phys. Rev. C 12, 644 (1975).
[2]X. Campi, H. Flocard, A. K. Kerman, and S. Koonin, Nucl. Phys. A151, 193 (1975).
[3]C. Thibault, G. Audi, M. Epherre, G. Huber, R. Klapisch, and F. Touchard (unpublished).
[4]C. Détraz, D. Guillemaud, G. Huber, R. Klapisch, M. Langevin, F. Naulin, C. Thibault, L. C. Carraz, and F. Touchard, Phys. Rev. C (to be published).
[5]B. J. Cole, A. Watt, and R. R. Whitehead, J. Phys. A 7, 1399 (1974).
[6]H. T. Duong and J. L. Vialle, Opt. Commun. 12, 71 (1974).
[7]G. Huber, C. Thibault, R. Klapisch, H. T. Duong, J. L. Vialle, J. Pinard, P. Juncar, and P. Jacquinot, Phys. Rev. Lett. 34, 1209 (1975).
[8]G. Huber, R. Klapisch, C. Thibault, H. T. Duong, P. Juncar, S. Liberman, J. Pinard, J. L. Vialle, and P. Jacquinot, C. R. Acad. Sc. Paris, B282, 119 (1976).
[9]A. M. Poskanzer, G. W. Butler, and E. K. Hyde, Phys. Rev. C 3, 882 (1971).
[10]C. Thibault-Philippe, thesis, Orsay, 1971 (unpublished).
[11]C. Thibault, G. Huber, G. Audi, M. Epherre, D. Guillemaud, R. Klapisch, F. Naulin, and F. Touchard, (unpublished).
[12]P. Juncar and J. Pinard, Opt. Commun. 14, 438 (1975); P. Juncar, thesis, Orsay, 1976 (unpublished).
[13]W. Weiershausen, Ann. Phys. (Leipzig) 15, 252 (1965); in *Advances in Mass Spectrometry*, edited by W. L. Mead, (The Institute of Petroleum, London 1966), Vol. 3, p. 755.
[14]S. G. Nilsson, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 29, No. 16 (1955).
[15]F. A. Babushkin, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 44, 1667 (1963). [Sov. Phys. JETP 17, 1118 (1963)].
[16]J. Bauche, private communication.
[17]R. Neumann, F. Trager, J. Kowalski, and G. zu Putlitz, Z. Phys. A279, 249 (1976).
[18]K. Heilig and A. Steudel, At. Nucl. Data Tables 14, 613 (1974).
[19]J. Bauche and R. J. Champeau, in *Advances in Atomic and Molecular Physics* (Academic Press, New York, 1976), Vol. 12.
[20]A. Bohr and B. R. Mottelson, *Nuclear Structure* (Benjamin, New York, 1969), Vol. 1.
[21]R. L. B. Elton, *Landolt-Börnstein: Nuclear Radii*, edited by H. R. Collard, R. L. B. Elton and R. Hofstadter (Springer, Berlin, 1967), New Series, Group I, Vol. 2.
[22]J. Bonn, G. Huber, H. J. Kluge, and E. W. Otten, Z. Phys. A276, 203 (1976).

[23]J. M. Eisenberg and W. Greiner, *Nuclear Theory* (North-Holland, Amsterdam, 1975), Vol. 1.
[24]J. Bauche, J. Phys. 35, 19 (1974).
[25]C. Cohen-Tannoudji and A. Kastler, in *Progress in Optics*, edited by E. Wolf (North-Holland, Amsterdam, 1966), Vol. V.
[26]V. Hughes, R. L. Long, Jr., M. S. Lubell, M. Posner, and W. Raith, Phys. Rev. A 5, 195 (1972).

ANNEXE V

ISOTOPE SHIFTS AND HYPERFINE STRUCTURE OF $^{38-47}$K BY LASER SPECTROSCOPY

F. TOUCHARD, P. GUIMBAL, S. BÜTTGENBACH [1], R. KLAPISCH [2], M. De SAINT SIMON, J.M. SERRE and C. THIBAULT
Laboratoire René-Bernas du C.S.N.S.M., Bât. 108, BP 1, F-91406 Orsay, France

and

H.T. DUONG, P. JUNCAR, S. LIBERMAN, J. PINARD and J.L. VIALLE
Laboratoire Aimé-Cotton [3], C.N.R.S. II, Bât. 505, F-91405 Orsay, France

Received 4 November 1981

Laser optical spectroscopy on a thermal atomic beam has been performed on the $4\,^2S_{1/2} - 4\,^2P_{1/2}$ D_1 line of $^{38,39,41-47}$K. Hyperfine structure constants and isotope shifts have been measured. Magnetic moments and changes in the mean square charge radii are deduced.

As part of systematic measurements on hyperfine structure (hfs) and isotope shift (IS) of radioactive alkali atoms, potassium has been studied. Although it is very close to the magic number $Z = 20$, no systematic measurements of hfs and IS have been reported before. We present here an investigation of $^{38,39,41-47}$K obtained with laser spectroscopy on a thermal atomic beam, as described in ref. [1]. Results concerning the hfs of the ground states of ^{43,44}K obtained by magnetic resonance during the same experiment are published separately [2]. Moreover, it appeared that ^{40}K could not be studied by the present method based on ion counting, because of the overwhelming background of $^{40}Ca^+$ from the ion source. The problem has been solved using a different technique [3].

The principle of the experiment and the set-up have already been described extensively [1,4]. Briefly, optical transitions are induced between the $4\,^2S_{1/2}$ ground state and the $4\,^2P_{1/2}$ excited state of the atom. Hyperfine optical pumping changes the relative populations of the two hyperfine levels of the ground state. This change is detected by measuring the intensity of the atomic beam at the exit of a sixpole magnet which focuses the atoms with $m_J = +1/2$ and defocuses those with $m_J = -1/2$. The radioactive atoms are produced by the fragmentation of iridium bombarded with 20 GeV protons of the CERN proton-synchrotron [5,6]. The optical transitions are induced by the light of a c.w. single-mode dye laser. The dye used is oxazine 750. The frequency of the laser is servo-controlled and scanned step by step by a "sigmameter" [7]. For the very narrow structures of the $^2P_{1/2}$ atomic state, a deconvolution of the observed resonance peaks has been performed.

Results concerning the hfs are gathered in table 1. Several nuclear spins, already assigned from nuclear spectroscopy, have been directly measured by the magnetic resonance technique described in ref. [1]. One can notice that the present result for the $A(^2P_{1/2})$ factor of ^{39}K is in disagreement with the old value given by Buck and Rabi [8]. It has been confirmed by a recent and more accurate experiment to be published elsewhere [3].

Values of the nuclear magnetic moment μ^A have been deduced from the hfs measurements using ^{39}K as a reference nucleus. The most precise values of μ^A now available are listed in table 1.

The experimental magnetic moment of ^{47}K is com-

[1] Permanent address: Institut für Angewandte Physik, Universität Bonn, D-5300 Bonn.
[2] Present address: DG Division, CERN, CH-1211 Genève 23.
[3] Laboratoire associé à l'Université Paris-Sud.

0 031-9163/82/0000–0000/$ 02.75 © 1982 North-Holland

Table 1
Hyperfine structure factors and magnetic moments.

A	I	$A(^2S_{1/2})$ (MHz)		$A(^2P_{1/2})$ (MHz)		$\mu(\mu_n)$
		this work	other results	this work	other results	
38	3		404.369(3)[b]			1.371(6)[f]
39	3/2	231.0(3)	230.8598602(19)[b]	27.5(4)	27.80(15)[e]	0.3914658(4)[g]
					28.85(30)[d]	
40	4		−285.7311(16)[b]		−34.49(11)[e]	−1.2982(4)[g]
						−1.292(6)[f]
41	3/2	126.9(8)	127.0069350(3)[b]	15.1(8)	15.19(21)[e]	0.2148699(2)[g]
						0.2154(10)[f]
42	2		−503.550779(12)[b]	−60.6(16)		−1.1425(6)[g]
						−1.138(5)[f]
43	3/2	97.1(12)	96.3242(15)[c]			0.1633(8)[f]
44	2[a]	−378.1(11)	−378.6872(12)[c]	−44.9(11)		−0.856(4)[f]
45	3/2	103.0(16)	102.2937(8)[b]			0.1734(8)[f]
46	2[a]	−465.1(12)		−55.7(13)		−1.051(6)[a,f]
47	1/2[a]	3420.2(29)		411.9(50)		1.933(9)[a,f]

[a] Present work. [b] Ref. [17]. [c] Ref. [2]. [d] Ref. [8]. [e] Ref. [3]. [f] Deduced from the factor $A(^2S_{1/2})$. The quoted error includes an assumed uncertainty of 0.5% to take into account the hyperfine anomaly. [g] Direct atomic beam magnetic resonance measurement [18].

patible with the assumption of a hole in the $s_{1/2}$ subshell [9], leading to the $1/2^+$ $[211]^{-1}$ assignment in the framework of the collective Nilsson model. Shell model calculations including configuration mixing agree within about 25% [10] and 50% [11] for other isotopes.

The IS values are given in table 2. Changes in the mean square charge radii $\delta\langle r^2\rangle^{A,A'} = \langle r^2\rangle^{A'} -$

Table 2
Isotope shift and change in the m.s. charge radius.

A	$\delta\nu^{39,A}$ (MHz)		$\delta\langle r^2\rangle^{39,A}$
	this work	other results	(fm^2)
38	−127.0(53)		−0.058(41)
39	0		0
40		125.58(26)[a]	0.0222(20)
41	235.25(75)	222(9)[b]	0.117(6)
		235.27(33)[a]	
42	351.7(19)	480(120)[b]	0.116(15)
43	459.0(12)		0.143(9)
44	564.3(14)		0.148(11)
45	661.7(16)		0.176(13)
46	762.8(15)		0.143(12)
47	857.5(17)		0.126(13)

[a] Ref. [3]. [b] Ref. [19].

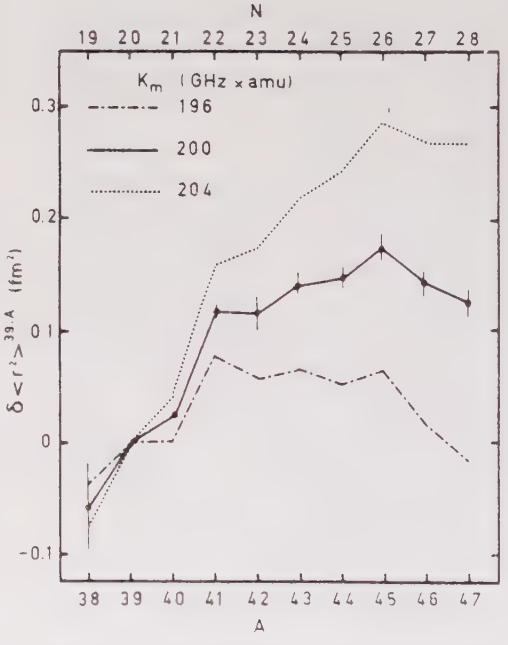


Fig. 1. Change in the mean square charge radius of potassium isotopes. The three curves show the influence of the uncertainty on $K_m = 200 \pm 4$ GHz amu. The error bars, which have been drawn only on the central curve, are purely experimental.

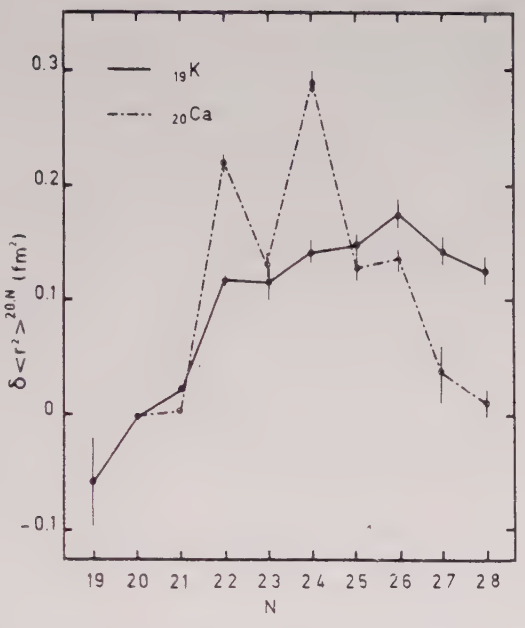


Fig. 2. Comparison of the changes in the mean square charge radii of potassium and calcium isotones.

$\langle r^2\rangle^A$ have been deduced following the procedure described in ref. [12]. The electronic factor F has been calculated in the Breit–Rosenthal approximation and found to be equal to -128 MHz/fm^2. The mass effect constant K_m has been deduced from an absolute measurement of the isotope shift in muonic atoms yielding $\delta\langle r^2\rangle_\mu^{39,41} = 0.117(40)$ fm^2 [13]. The uncertainty in the calibration value $\delta\langle r^2\rangle_\mu^{39,41}$ introduces an uncertainty in the mass effect constant: $K_m = 200 \pm 4$ GHz amu and hence a systematic error appears when $\delta\langle r^2\rangle^{39,A}$ is calculated from the isotope shift measurement. This error is not taken into account in table 2 but its influence is shown in fig. 1.

In fig. 2, results corresponding to the central value $K_m = 200$ GHz amu are compared to those obtained for calcium isotones [14] for which the proton shell is closed. In spite of the uncertainties, some general trends can be drawn from this comparison. First, one can observe a shrinking of the nuclear charge radii in both cases at the end of the filling of the $f_{7/2}$ shell. However, the effect is weaker for potassium, whatever the value of K_m. One can also notice that the odd–even staggering is not so strong for potassium as for calcium. The staggering in calcium has been explained by mixing of $(sd)^n_{7/2}f^{m+n}$ configurations [15]. Following a more recent publication [16], the effect should be smoothed for potassium which has an odd number of protons.

We would like to thank Professor S.K.T. Mark for valuable help during our stay in CERN. R. Baronnet, J. Biderman, R. Fergeau, M. Jacotin, J.F. Képinski, G. Le Scornet and the CERN PS staff have been of great and able assistance before and during the experiments. One of us (S.B.) would like to thank the Deutsche Forschungsgemeinschaft for a fellowship.

References

[1] G. Huber et al., Phys. Rev. C18 (1978) 2342.
[2] H.T. Duong et al., submitted to J. de Phys.
[3] N. Bendali et al., to be published in J. of Phys. B.
[4] F. Touchard et al., submitted to Phys. Rev. C.
[5] F. Touchard et al., Nucl. Instrum. Methods 186 (1981) 329.
[6] M. de Saint Simon et al., Nucl. Instrum. Methods 186 (1981)87.
[7] P. Juncar et al., Opt. Commun. 14 (1975) 438.
[8] P. Buck et al., Phys. Rev. 107 (1957) 1291.
[9] E. Newman et al., Nucl. Phys. A110 (1968) 366.
[10] K. Arita, J. Phys. Soc. Japan 34 (1973) 513.
[11] I.P. Johnstone, Phys. Rev. C22 (1980) 2561.
[12] K. Heilig et al., At. Data Nucl. Data Tables 14 (1974) 613.
[13] H.D. Wohlfahrt et al., Phys. Rev. C23 (1981) 533.
[14] F. Träger, Z. Physik A299 (1981) 33.
[15] E. Caurier et al., Phys. Lett. 96B (1980) 15.
[16] E. Caurier et al., Proc. 9th Intern. Conf. on High energy physics and nuclear structure, Versailles (1981).
[17] G.H. Fuller, J. Phys. Chem. Ref. Data 5 (1976) 835.
[18] C.M. Lederer et al., Table of Isotopes, 7th Ed., App. VII, (Wiley, New York, 1978).
[19] E.C. Wang et al., Phys. Rev. A4 (1971) 838.

ANNEXE VI

J. Physique **43** (1982) 509-514 MARS **1982**, PAGE 509

Classification
Physics Abstracts
32.20B — 35.10F

Ground state hyperfine structures of ^{43}K and ^{44}K measured by atomic beam magnetic resonance coupled with laser optical pumping

H. T. Duong, P. Juncar, S. Liberman, J. Pinard, J. L. Vialle

Laboratoire Aimé-Cotton (*), C.N.R.S. II, Bât. 505, 91405 Orsay, France

S. Büttgenbach (**), P. Guimbal, M. de Saint Simon, J. M. Serre, C. Thibault, F. Touchard and R. Klapisch

Laboratoire René-Bernas du Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse, 91406 Orsay, France

(*Reçu le 12 novembre 1981, accepté le 24 novembre 1981*)

Résumé. — Les structures hyperfines de l'état fondamental de ^{43}K et ^{44}K ont été mesurées par une méthode de résonance magnétique sur jet atomique dans laquelle les spins atomiques sont orientés par pompage optique laser. Les résultats spectroscopiques sont les suivants :

$$\Delta\nu_{43}(^2S_{1/2}) = 192{,}648\,4\,(30)\ \text{MHz} \quad \text{et} \quad \Delta\nu_{44}(^2S_{1/2}) = -\,946{,}718\,(3)\ \text{MHz}\,.$$

La sensibilité de notre méthode est comparée à celle obtenue avec un appareil correspondant au dispositif classique de Rabi.

Abstract. — The ground state hyperfine structures of ^{43}K and ^{44}K have been measured by an atomic beam magnetic resonance method in which the atoms are spin-polarized by laser optical pumping. The spectroscopic results are : $\Delta\nu_{43}(^2S_{1/2}) = 192.648\,4\ (30)$ MHz and $\Delta\nu_{44}(^2S_{1/2}) = -\,946.718\ (3)$ MHz. The sensitivity of our method is compared to the one achieved in classical ABMR apparatus.

1. **Introduction.** — High resolution laser spectroscopy on long series of isotopes has shown to be a very fruitful method for the investigation of nuclei properties [1-3]. A wealth of data has been obtained in this way for Na [4], Rb [5], Cs [6], Fr [7] and very recently for K isotopes [8]. Isotope shifts (*I.S.*), nuclear spins (I), hyperfine constants of the ground state $[A(^2S_{1/2})]$ as well as of the excited states $[A(^2P_{1/2})$, $A(^2P_{3/2})$, $B(^2P_{3/2})]$ have been determined by optical spectroscopy, with an accuracy of a few MHz, even 1 MHz in the best cases.

In a recent experiment [9] on the D_1 and D_2 lines of $^{39,40,41}K$ using well collimated atomic beams and modulated laser light, an accuracy and a reproducibility of a few hundred kHz for the frequency intervals measurements have been obtained. This is comparable to the usual precision given by radio-frequency methods for the same excited states (optical double resonance and level crossing) [10-12].

On the other hand, for the hyperfine structure of the ground state, it is well known that the r.f. spectroscopy [13] leads to much more accurate measurements than the optical spectroscopy : the levels involved in the r.f. transitions are hyperfine sublevels of the ground state ; the frequency width of the resonances is then only limited by the interaction time. With sophisticated techniques, precisions better than 1 Hz have been reported [14, 15] and it is possible, without special care, to get an accuracy of a few kHz which is already three orders of magnitude better than that obtained in optical laser spectroscopy.

In the present paper we report on an r.f. magnetic resonance experiment on radioactive potassium isotopes performed during the laser optical spectroscopy experiment quoted above and using the same apparatus. As a test of the accuracy obtained with this experimental set-up, the well known h.f.s. of ^{45}K and ^{20}Na have been measured. Then the h.f.s. of ^{43}K and ^{44}K have been determined. The h.f.s. of other

(*) Laboratoire associé à l'Université Paris-Sud.

(**) Permanent address : University of Bonn, D-5300, Bonn.

isotopes have not been studied in this way because of the frequency limitation of the r.f. amplifier (1 GHz).

2. **Principle of the experiment.** — The principle of the laser spectroscopy experiment has been extensively explained in previous papers [4, 5, 16]. In brief, a thermal atomic beam of potassium interacts at right angle with the light beam from a C.W. tunable single mode dye laser (see Fig. 1*a*) in the presence of a weak static magnetic field H_0, which defines the quantization axis, parallel to the laser beam. At optical resonance with one of the hyperfine components of the D_1 line

$$(4\,^2S_{1/2} \leftrightarrow 4\,^2P_{1/2}),$$

the laser light induces an optical pumping which changes the population distribution between the magnetic substates (F, m_F) of the ground state. These population changes are analysed by a sixpole magnet, which focusses the atoms corresponding to $m_J = +1/2$ and defocusses those corresponding to $m_J = -1/2$ [16]. After the sixpole magnet, the focussed atoms of the beam are ionized, mass separated and counted. When the laser frequency is scanned, the optical resonances appear as positive or negative peaks on a baseline ion signal. One can obtain in this way a first determination of the hyperfine ground state splitting with an accuracy of a few MHz. Moreover, the sign of the nuclear magnetic moment can be deduced from the relative intensities of the four components of the hyperfine structure.

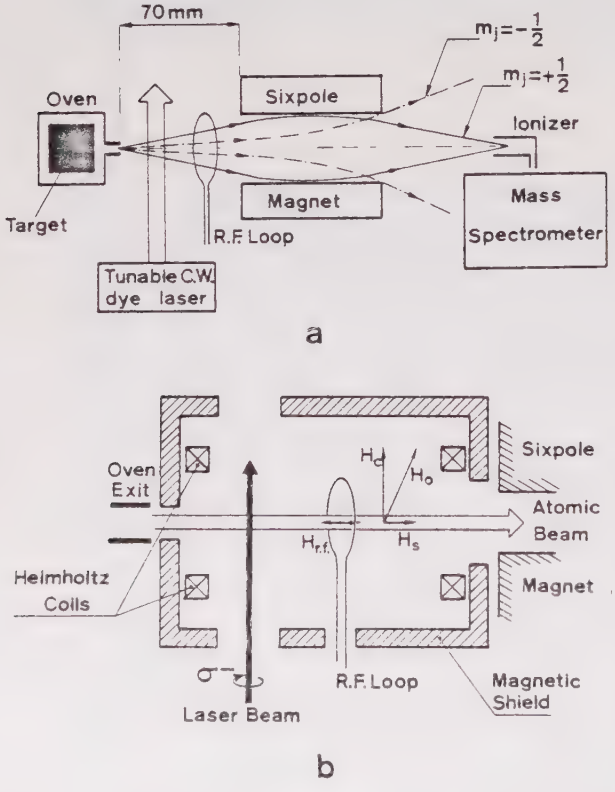


Fig. 1. — *a*) Principle of the experiment; *b*) Schematic view of the interaction region.

Let us now suppose that the laser frequency is locked on the frequency of the atomic transition giving the strongest negative peak, i.e. for an isotope with positive nuclear magnetic moment

$$4\,^2S_{1/2}\,F = I + 1/2 \leftrightarrow 4\,^2P_{1/2}\,F' = I + 1/2$$

or in the case of negative nuclear magnetic moment

$$4\,^2S_{1/2}\,F = I - 1/2 \leftrightarrow 4\,^2P_{1/2}\,F' = I + 1/2\,.$$

The laser light beam is σ^- polarized with respect to H_0. Under these conditions, the detected atomic beam intensity is strongly reduced since, by optical pumping, the atoms are transferred from the focussed $F = I + 1/2$ (or $F = I - 1/2$ for $\mu_I < 0$) state to the defocussed state $F = I - 1/2$ (or $F = I + 1/2$ for $\mu_I < 0$). Between the interaction region with the laser light and the sixpole magnet, a r.f. magnetic field given by a r.f. loop is applied to the optically pumped atoms (Fig. 1*a*). When the r.f. frequency is set equal to the frequency of an allowed magnetic transition between two Zeeman sublevels of the two ground state hyperfine levels, the r.f. magnetic field tends to equalize the populations of the involved sublevels, so that the observed signal increases again. Since H_0 is known, the hyperfine interval in zero field can be deduced from the frequencies of the observed magnetic transitions $F = I - 1/2, m_F \leftrightarrow F = I + 1/2, m_F + \Delta m_F$ where :

$\Delta m_F = \pm 1$ if the r.f. field is perpendicular to H_0.

$\Delta m_F = 0$ if the r.f. field is parallel to H_0.

The only difference between the method described above and the ABMR method introduced by Rabi [13] is that the atoms are spin-polarized by laser interaction instead of magnetic deflection in the A magnet. Such a possibility of replacing deflecting inhomogeneous magnetic field by optical pumping had been pointed out several years ago [17-19]. Moreover, just as in the flop-in geometry in classical ABMR method, positive signals on a zero background could be achieved, provided that the hyperfine component to be matched with the laser frequency is suitably chosen.

3. **Apparatus.** — The apparatus is almost the same as the one used for previous measurements on sodium isotopes and a detailed description can be found in reference [4]. We report here only the specific modifications introduced for this experiment.

A carbon and iridium powder target is placed inside a high temperature oven. When bombarded by the 20 GeV proton beam from the proton synchrotron (P.S.) at C.E.R.N., the many produced nuclei, once thermalized, effuse from the oven and form an atomic beam (see Fig. 1*a*). The laser system consists in a commercial C.W. single mode dye laser (CR 599) pumped by a Kr^+ laser (CR 3 000 K). Its frequency is scanned step by step and servocontrolled by a « sigmameter » [20]. The proper dye to be used at the

wavelength of the potassium D_1 line ($\lambda = 770$ nm) is oxazine 750. One watt r.f. power, continuously tunable in the range 10 MHz-1 GHz is delivered by a commercial r.f. generator (Rohde and Schwartz SMS 0.4-1 040 MHz) followed by a linear wide band amplifier.

Special care has been taken in the design of the interaction region, schematically shown in figure 1*b*. Two Helmholtz coils produce a homogeneous static magnetic field H_c parallel to the laser beam while the r.f. magnetic field is produced by a single-turn copper loop centred on the atomic beam and perpendicular to it. Therefore the r.f. magnetic field seen by the atoms is parallel to the atomic beam direction. The whole interaction region is surrounded by a magnetic shield made of Armco iron and mu-metal sheet. In the direction of the sixpole magnet a hole is bored in this shield, with such a diameter that the magnetic stray field from the sixpole magnet is sufficient to avoid nonadiabatic transitions. This inhomogeneous stray field $\mathbf{H}_s$, is very weak at the r.f. coil (typically 0.1 G) and pointing approximately parallel to the atomic beam. The total static magnetic field is $\mathbf{H}_0 = \mathbf{H}_c + \mathbf{H}_s$; for $H_c \gg H_s$ it is approximately perpendicular to the atomic beam and homogeneous; for $H_c = 0$ it is quite parallel to the atomic beam and strongly inhomogeneous.

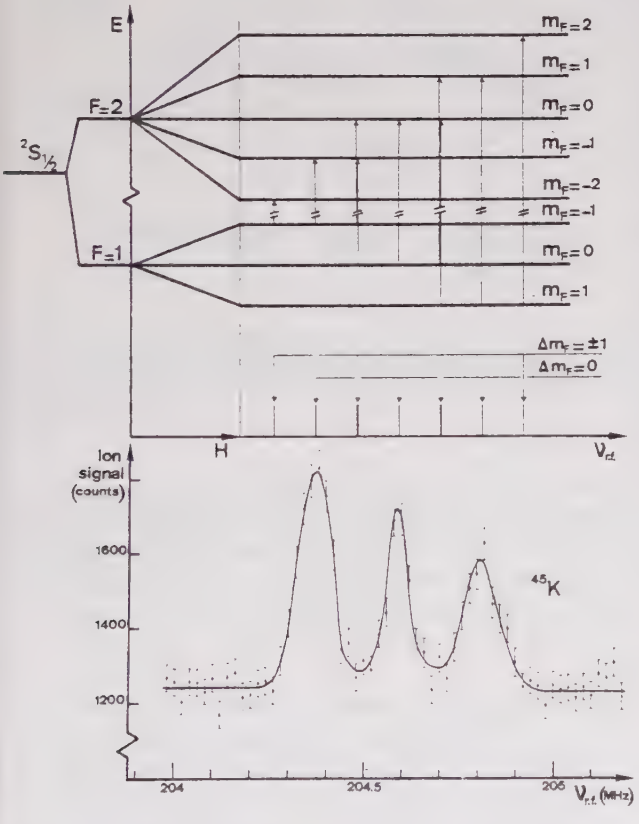


Fig. 2. — Zeeman splitting of the $\Delta F = 1$ hyperfine transition for ^{45}K. The recording shown in the lower part of the figure has been obtained with a static field parallel to the r.f. field (see text). Therefore resonances are observed only for the $\Delta m_F = 0$ components. Note that the central resonance is narrower than the two other ones which are broadened due to the strong inhomogeneity of the static magnetic field.

Figure 2 presents a recording of the Zeeman components of the $\Delta F = 1$ r.f. transition for ^{45}K. It has been obtained without d.c. current in the Helmholtz coils and therefore the static magnetic field H_0 is the stray field H_s. Since the r.f. field and H_0 are then parallel, only the $\Delta m_F = 0$ resonances occur. Moreover, the central resonance is narrower than the two other ones because it is field independent to first order while the two others are broadened due to the strong inhomogeneity of the static magnetic field.

4. **Experimental procedure.** — Several operations are successively carried out for measuring the hyperfine splitting of the ground state. First an approximate value of this hyperfine splitting is obtained by laser spectroscopy together with the sign of the nuclear magnetic moment as explained in paragraph 2. Then the static field $\mathbf{H}_c$ is set to a value in the range 0.5-1 gauss so that the amplitude of $\mathbf{H}_0$

$$(H_0 = \sqrt{H_c^2 + H_s^2})$$

is roughly known. $\mathbf{H}_0$ is nearly, but not exactly, perpendicular to the atomic beam, i.e. the direction of the r.f. magnetic field. Therefore the $\Delta m_F = \pm 1$ resonances are easily excited with low r.f. power while for the $\Delta m_F = 0$ resonances more r.f. power must be applied to the loop. Figure 3 presents all the Zeeman components of the $\Delta F = 1$ transition in the case of ^{43}K ($I = 3/2$, $\mu_I > 0$). All the components, except $(1, -1) \leftrightarrow (2, -2)$, correspond to a change in m_J and are then observable. Moreover, these resonances are approximately equidistant and the frequency spacing, essentially related to H_0, is roughly known. Such a situation is time-saving in the search of a first resonance because it permits to reduce the frequency range to be scanned. When one component has been found it becomes easy to record the other ones. All the components of the Zeeman splitting of ^{43}K have been recorded although this procedure was not necessary because the hyperfine structure of the ground state was already known with an accuracy of 50 kHz [21]. The result is shown on figure 3. The same procedure was repeated for ^{44}K.

It is well known in ABMR technique that one of the components is only second order magnetic field dependent, i.e. $(I + 1/2, 0) \leftrightarrow (I - 1/2, 0)$ for the odd isotopes and the unresolved doublet

$$\{(I+1/2, 1/2) \leftrightarrow (I-1/2, -1/2) \quad (I+1/2, -1/2) \leftrightarrow (I-1/2, 1/2)\}$$

for the even isotopes [22]. The last step of the experimental procedure is to identify clearly this component and to precisely measure its frequency. Since this component does not practically depend on the magnetic field H_0 it can be identified by changing the magnetic field amplitude.

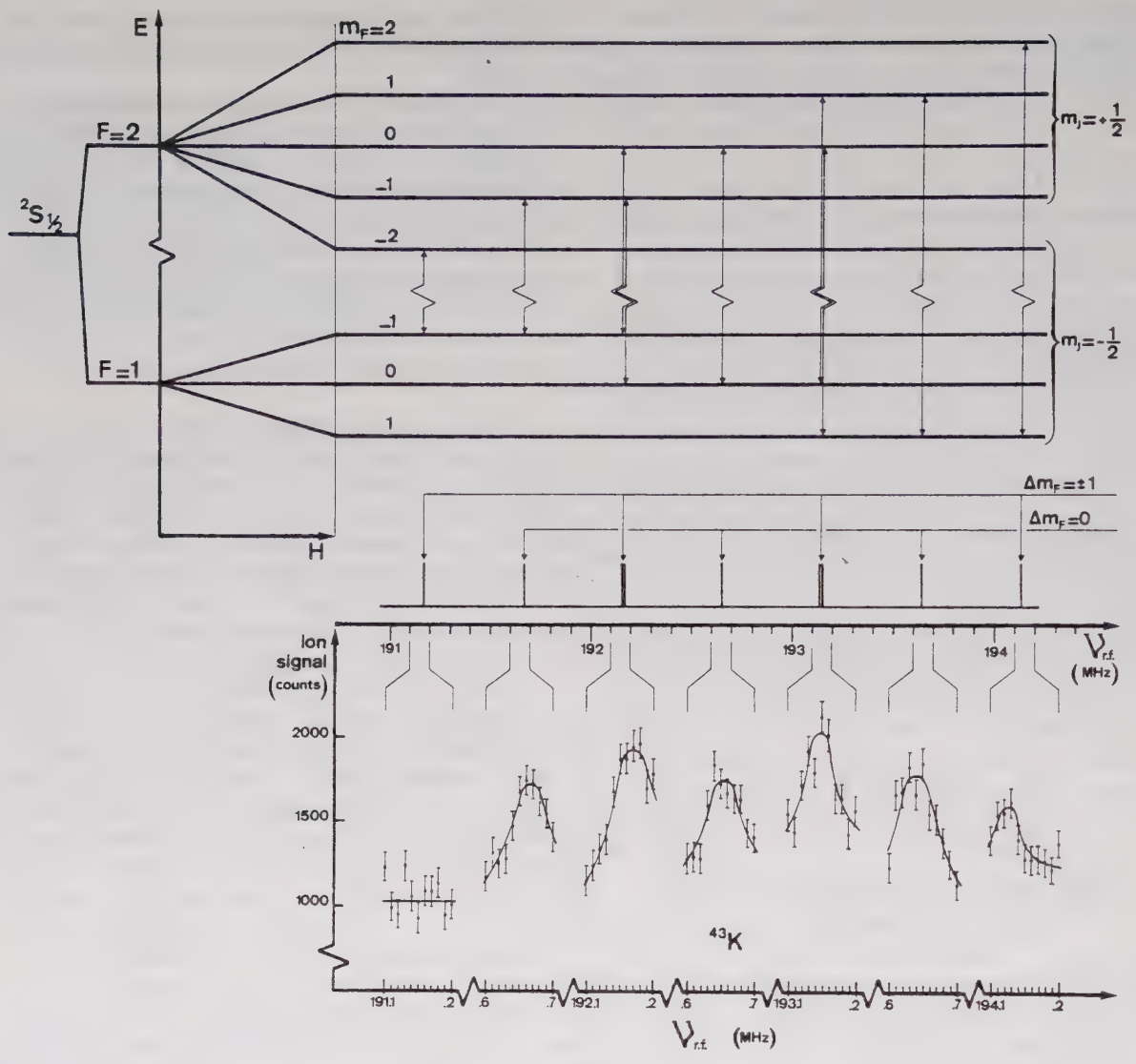


Fig. 3. — Zeeman splitting of the $\Delta F = 1$ hyperfine transition in the case of ^{43}K ($I = 3/2$, $\mu_I > 0$). All the Zeeman components, except $(1, -1) \leftrightarrow (2, -2)$, correspond to a change in m_J and are therefore observable. In the lower part of the figure the frequency scale is strongly expanded for each recorded resonance.

5. **Results and discussion.** — Figure 4 presents a precise recording of the first order field independent doublet of ^{44}K. To get the exact hyperfine structure in zero field one has to take into account the second order correction. An accurate value of the magnetic field amplitude H_0 can be deduced by a least-square fit from the experimental frequency spacings between the Zeeman components of the r.f. transition. This fit gives $H_0 = 0.704$ G (respectively 0.700 G) for ^{43}K (respectively ^{44}K) with an accuracy better than 1 %. Taking into account this value of the magnetic field H_0 the second order correction is calculated for both isotopes (-10 kHz for ^{43}K and -2 kHz for ^{44}K). The deduced values of the ground state hyperfine structures are indicated in table I.

For ^{43}K, our measurement is in agreement with a less precise value quoted in the literature [21]. Our 3 kHz error bar for ^{43}K and ^{44}K is estimated from the consistency between several measurements of the same resonance. We have also measured the well known hyperfine structures of ^{45}K [23] and ^{20} Na [24]. The 6 kHz error bar reflects the shorter time devoted to these measurements. Our results, reported in table I, are in very good agreement with earlier, more precise, results.

As pointed out, the present method is comparable to the classical ABMR method working in the flop-in arrangement. Our apparatus presents the advantage of simplicity and its length is greatly reduced compared to a classical ABMR apparatus : the distance from the oven to the entrance of the sixpole magnet, which corresponds to the length of the A and C regions of an ABMR apparatus, is only seven centimeters (see Fig. 1*a*). This short distance and the focussing properties of the sixpole magnet provide a high acceptance suitable for the study of very rare isotopes. Never-

Table I. — *Measured ground state hyperfine structures.*

Isotope	$\Delta\nu_{H.F.S.}$ ($F = I - 1/2 \leftrightarrow F = I + 1/2$) [MHz]		$A(^2S_{1/2})$ [MHz]
	our results	other results	deduced from the most precise result
^{43}K	192.648 4 (30)	192.64 (5) ([a])	96.324 2 (15)
^{44}K	− 946.718 (3)		− 378.687 2 (12)
^{45}K	204.590 (6)	204.587 3 (15) ([b])	102.293 6 (8) ([b])
^{20}Na	276.858 (6)	276.855 (3) ([c])	110.742 0 (12) ([c])

([a]) Ref. [21].
([b]) Ref. [23].
([c]) Ref. [24].

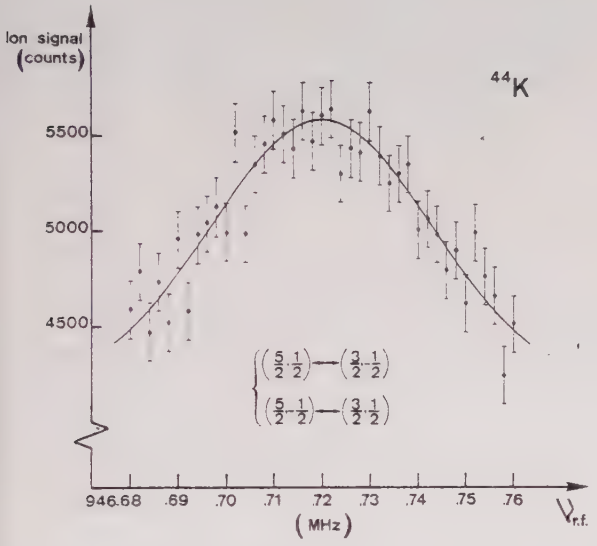


Fig. 4. — Typical recording of the resonance curve corresponding to the first order field independent unresolved doublet for ^{44}K.

theless it is difficult to deduce from this experiment our limit of sensitivity. Production rates of ^{44}K and ^{45}K were about 2.5×10^7 atoms/proton pulse (proton pulse intensity : 10^{13} protons) but they do not represent the lower limit (see the recording of ^{45}K on figure 2). Moreover the on-line produced potassium isotopes were unfavourable cases for two reasons :

— For ^{43}K and ^{44}K, signals were perturbed by an important background due to natural calcium isobars coming from the heated ion source. This background has been subtracted on the recordings but it contributes to the statistical noise.

— For ^{44}K, the nuclear magnetic moment is negative ; this is unfavourable since it is then impossible to optically pump all the atoms into defocussed states and therefore, the flop-in resonances do not occur on a zero background.

One can get an idea of the sensitivity of our method from the limit of sensitivity obtained with the same apparatus in optical laser spectroscopy work. Optical spectroscopy has been performed with production rates as low as 10^4 atoms/proton pulse for sodium at the proton synchrotron of C.E.R.N. [25] and 10^5 atoms/s for rubidium at the ISOLDE mass separator (C.E.R.N.) [5]. In our method, the r.f. resonance signals are of course weaker than the optical resonance signals because the Zeeman degeneracy is removed but the loss in sensitivity due to this fact is, in all cases, certainly less than a factor of ten. Therefore our method can be used with isotope production rates higher than 10^6 atoms/s. This limit corresponds to the one obtained with a very efficient ABMR apparatus [26] especially designed to work with atomic beams of rare isotopes.

References

[1] Bonn, J., Klempt, W., Neugart, R., Otten, E. W. and Schinzler, B., *Z. Phys.* A **289** (1979) 227.

[2] Bekk, K., Andl, A., Göring, S., Hanser, A., Nowicki, G., Rebel, H. and Schatz, G., *Z. Phys.* A **291** (1979) 219.

[3] Bergmann, E., Bopp, P., Dorsch, C., Kowalski, J., Träger, F. and zu Putlitz, G., *Z. Phys.* A **294** (1980) 319.

[4] Huber, G., Touchard, F., Büttgenbach, S., Thibault, C., Klapisch, R., Duong, H. T., Liberman, S., Pinard, J., Vialle, J. L., Juncar, P. and Jacquinot, P., *Phys. Rev.* C **18** (1978) 2342.

[5] Thibault, C., Touchard, F., Büttgenbach, S., Klapisch, R., de Saint Simon, M., Duong, H. T., Jacquinot, P., Juncar, P., Liberman, S., Pillet, P., Pinard, J., Vialle, J. L., Pesnelle, A. and Huber, G., *Phys. Rev.* C **23** (1981) 2720.

[6] Thibault, C., Touchard, F., Büttgenbach, S., Klapisch, R., de Saint Simon, M., Duong, H. T., Jacquinot, P., Juncar, P., Liberman, S., Pillet, P., Pinard, J., Vialle, J. L., Pesnelle, A. and Huber, G., *Nucl. Phys.* A **367** (1981) 1.

[7] Liberman, S., Pinard, J., Duong, H. T., Juncar, P., Pillet, P., Vialle, J. L., Jacquinot, P., Touchard,

F., BÜTTGENBACH, S., THIBAULT, C., DE SAINT SIMON, M., KLAPISCH, R., PESNELLE, A., and HUBER, G., *Phys. Rev.* A **22** (1980) 2732.

[8] TOUCHARD, F., BÜTTGENBACH, S., GUIMBAL, P., KLAPISCH, R., DE SAINT SIMON, M., SERRE, J. M., THIBAULT, C., DUONG, H. T., JUNCAR, P., LIBERMAN, S., PINARD, J., VIALLE, J. L. and HUBER, G., to be published in *Phys. Lett. B* (1982).

[9] BENDALI, N., DUONG, H. T. and VIALLE, J. L., *J. Phys. B* **14** (1981) 4231.

[10] BUCK, P. and RABI, I. I., *Phys. Rev.* **107** (1957) 1291.

[11] NEY, J., *Z. Phys.* **223** (1969) 126.
NEY, J., REPNOW, R., BUCKA, H. AND SVANBERG, S., *Z. Phys.* **213** (1968) 192.

[12] SCHMIEDER, R. W., LURIO, A. and HAPPER, W., *Phys. Rev.* **173** (1968) 76.

[13] RABI, I. I., ZACHARIAS, J. R., MILLMAN, S. and KUSCH, P., *Phys. Rev.* **53** (1938) 318.

[14] FULLER, G. H., *J. Phys. Chem. Ref. Data* **5** (1976) 835.

[15] PENSELIN, S., MORAN, T., COHEN, V. W. and WINKLER, G., *Phys. Rev.* **127** (1962) 524.

[16] DUONG, H. T. and VIALLE, J. L., *Opt. Commun.* **12** (1974) 71.

[17] KASTLER, A., *J. Physique Radium* **11** (1950) 255.
DEMBCZYNSKI, J., ERTMER, W., JOHANN, U., PENSELIN, S. and STINNER, P., *Z. Phys.* A **291** (1979) 207.

[18] BUCKA, H., *Z. Phys.* **191** (1966) 199.

[19] ARDITI, M. and PICQUÉ, J. L., *J. Physique Lett.* **41** (1980) L-379 and *C.R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* Paris **B 290** (1980) 461.

[20] JUNCAR, P. and PINARD, J., *Opt. Commun.* **14** (1975) 438.

[21] PETERSEN, F. R., EHLERS, V. J., EWBANK, W. B., MARINO, L. L. and SHUGART, H. A., *Phys. Rev.* **116** (1959) 734.

[22] RAMSEY, N. F., *Molecular Beams* (Clarendon Press, Oxford) 1956, p. 84.

[23] GARRETT, G. J., JACKSON JR., A. D. and AMES, O., *Phys. Rev.* **161** (1967) 1152.

[24] SCHWEICKERT, H., DIETRICH, J., NEUGART, R. and OTTEN, E. W., *Nucl. Phys.* A **246** (1975) 187.

[25] KLAPISCH, R., paper presented at the *7th Inter. Conf. on Atomic Physics*, (Cambridge, Mass. U.S.A.) August 4-8 (1980).

[26] EKSTRÖM, C. and LINDGREN, I., in *Atomic Physics*, Vol. **5**, eds. R. Marrus, M. Prior and H. Shugart (Plenum Press, New York) 1977, p. 201.

ANNEXE VII

PHYSICAL REVIEW C VOLUME 23, NUMBER 6 JUNE 1981

Hyperfine structure and isotope shift of the D_2 line of $^{76-98}$Rb and some of their isomers

C. Thibault, F. Touchard, S. Büttgenbach,* R. Klapisch, and M. de Saint Simon
Laboratoire René Bernas du Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse, 91406 Orsay, France

H. T. Duong, P. Jacquinot, P. Juncar, S. Liberman, P. Pillet, J. Pinard, and J. L. Vialle
Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II, 91405 Orsay, France

A. Pesnelle†
CERN, Geneva, Switzerland

G. Huber
Gesellschaft für Schwerionenforschung, D-6100, Darmstadt 1, Germany
(Received 17 October 1980)

Hyperfine structure, spin, and isotope shift measurements have been performed on $^{76-98}$Rb and ^{78,81,82,84,86,90}Rb^m. The Rb nuclei have been produced either by spallation of Nb or by fission of U by a 600 MeV proton beam. They have been separated in mass before being transformed into a thermal atomic beam which interacts at a right angle with the light from a c.w. tunable dye laser. The charge radii changes deduced from the isotope shifts exhibit shell effects at $N = 50$ and deformations at $N = 60$, which are discussed.

[NUCLEAR STRUCTURE $^{76-98}$Rb, ^{78,81,82,84,86,90}Rb^m. Measured hyperfine constants $A(5s\ ^2S_{1/2})$, $A(5p\ ^2P_{3/2})$, $B(5p\ ^2P_{3/2})$; spins, isotope shifts. Deduced μ, Qs, $\delta\langle r^2\rangle$. High resolution laser spectroscopy on thermal atomic beams.]

I. INTRODUCTION

High resolution laser spectroscopy coupled to highly sensitive methods of detection has shown to be very useful for determinations of nuclear spins, nuclear magnetic moments, as well as isotope shift measurements of long series of nuclei of the same element, even for very short-lived ones. Such an experiment has been performed with sodium isotopes of mass number 21 to 31.[1,2] The results that we obtained encouraged us to pursue the systematic study of series of other alkali isotopes. A preliminary experiment has given the structure of the blue D_1 second resonance line of cesium isotopes from mass number 123 up to 137.[3] Another similar experiment has permitted us to observe for the first time the D_2 resonance line of francium[4] and to study the hyperfine structure (hfs) for six of its isotopes.[5]

In the present paper we report on the measurements of hyperfine structure and isotope shifts of rubidium isotopes and isomers from mass number 76 up to 98. A special effort was made to obtain results on ^{97,98}Rb ($N = 60, 61$) as the onset of a sudden deformation for $N \geq 60$ had previously been deduced from the measurement of the atomic masses of these isotopes.[6]

II. EXPERIMENTAL PROCEDURE AND SETUP

The experimental procedure has been extensively described in preceding papers.[1,2,7,8] The experiment rests upon the detection of optical resonances through a magnetic deflection of atoms. In brief, a thermal atomic beam of rubidium interacts at a right angle with the light beam of a tunable single mode c.w. dye laser in the presence of a weak magnetic field parallel to the laser beam (Fig. 1). When tuned at the resonance with one of the hyperfine components of the D_2 line ($5s\ ^2S_{1/2} - 5p\ ^2P_{3/2}$), the laser light may induce an optical pumping which changes the population distribution between the magnetic substates F, m_F, of the ground state. These changes are analyzed by a six-pole magnet[8] according to the value of $m_J = \pm\frac{1}{2}$. The atoms focused by the six-pole magnet are counted by an electron multiplier after they have been ionized and passed through a mass spectrometer. The signal observed while scanning the laser frequency is shown on Fig. 2. From the position of the five observable and well resolved hyperfine transitions (for nuclear spins $I \geq 1$), one can easily deduce the isotope shift as well as the hyperfine constants of the $^2S_{1/2}$ and $^2P_{3/2}$ states, from which the nuclear magnetic moment μ and the electric quadrupole moment Q are determined.[9,10] As described previously, the unknown spins I can be measured by magnetic resonance in a weak static magnetic field.[2]

A. Atomic beam production

The radioactive nuclei are produced either by spallation of niobium or by fission of uranium[11]

 © 1981 The American Physical Society

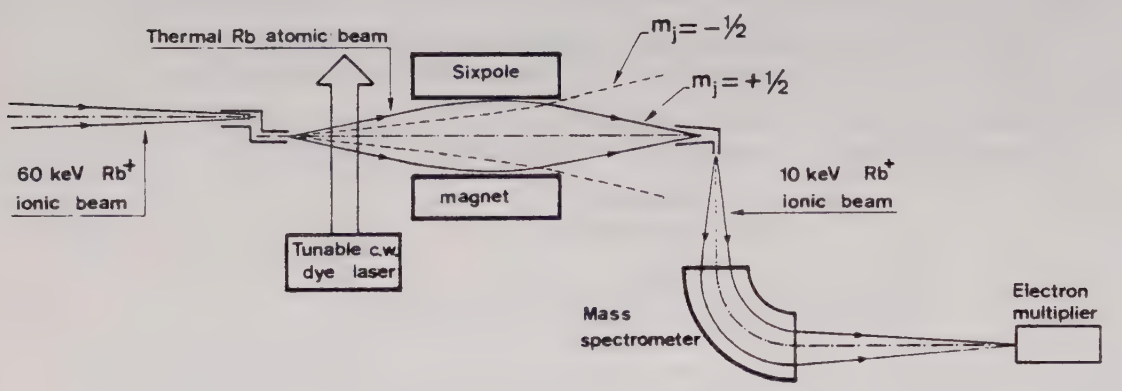


FIG. 1. Schematic view of the experiment. The 60 keV ionic beam from ISOLDE is stopped and neutralized to form a thermal atomic beam which interacts with the light from a tunable c.w. dye laser. The optical pumping, when it occurs, produces changes in population distribution between Zeeman sublevels, which are detected by use of a six-pole magnet. The $m_J = +\frac{1}{2}$ atoms are focused on the input of an ionizer; 10 keV ions are then produced which are passed through the mass spectrometer and counted by the electron multiplier.

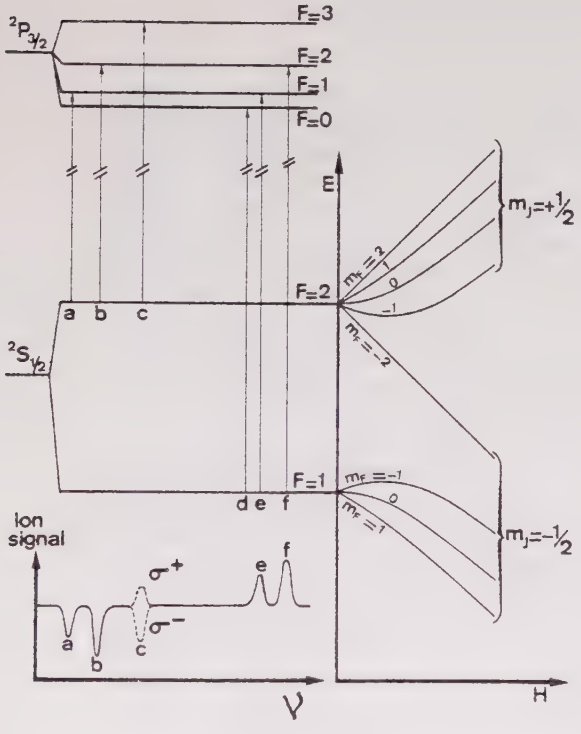


FIG. 2. Signals obtained for the D_2 line when $I = \frac{3}{2}$. The transitions a, b, e, f, induce an optical pumping detected by the six-pole magnet which focuses the $m_J = +\frac{1}{2}$ states. The transition c can be detected through Zeeman pumping by use of σ^+ or σ^- polarized light in the presence of a weak magnetic field. For σ^+ or σ^- polarization the Zeeman pumping favors the upper (lower) m_F level and finally produces a positive (negative) signal. The transition d, which does not undergo any optical pumping, cannot be observed by the used magnetic detection. These five transitions can be observed for $I \geq 1$.

(Fig. 3), both induced by the 600 MeV protons delivered by the CERN synchrocyclotron (SC). The atoms are mass separated by the on-line separator ISOLDE which provides a 60 keV monoionic beam. It is converted into a thermal atomic beam through a special device (Fig. 4); the ions are implanted onto a tantalum surface heated at 1200 °C and then reemitted as thermalized ions. The heating voltage directs these ions towards a tubular region

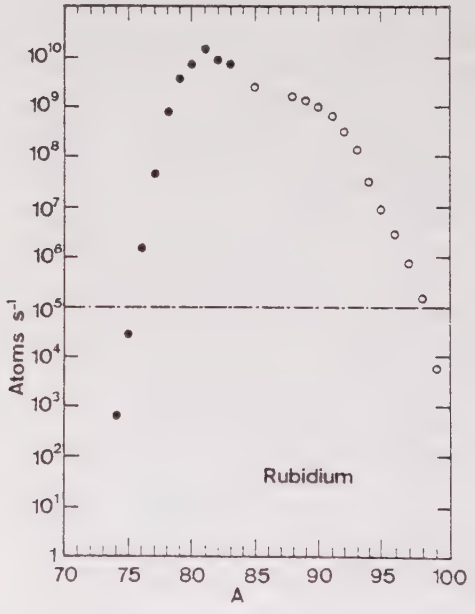


FIG. 3. ISOLDE production yields of rubidium isotopes obtained by spallation of niobium (full circles) or by fission of uranium (empty circles) using the 0.8 μA beam of 600 MeV protons from the SC at CERN. Noise considerations as well as the sensitivity of our technique of detection allowed us to study all isotopes produced at a higher rate than 10^5 atoms/s.

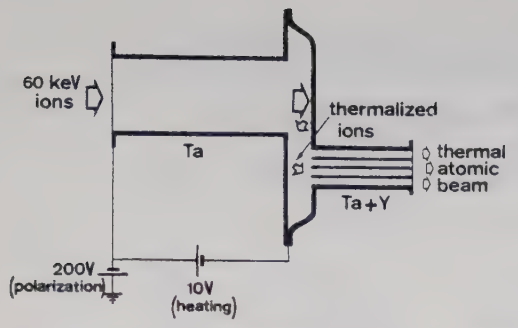


FIG. 4. Special device used to transform the 60 keV ions from ISOLDE into a thermal atomic beam. The ions are first thermalized and finally neutralized when remitted by the Ta+Y surface of the output tubes.

made of tantalum coated with yttrium. Because of the low work function of yttrium, the ions can be neutralized there. In addition, a static potential of about 200 V confines the ions inside the tube so that only atoms can be evaporated out of the device. From geometrical considerations, the efficiency of the neutralization has been estimated to be better than 80% for a desorption time of 150 ms (half-maximum).

B. Laser system

Basically, the laser system is the same as the one used during former experiments.[2] It is a commercial c.w. tunable dye laser (CR 599) oscillating on one single mode whose frequency is servo-controlled and scanned step by step by a "sigma-meter"[2,12] which is itself stabilized using a He-Ne laser locked on an iodine saturated absorption line. As the D_2 line of rubidium is located at wavelength $\lambda = 780.0$ nm, the proper dye to be used is the so-called "DEOTC" dissolved in ethyl-glycol mixed with 10% of dimethylsulfoxyde (DMSO). The dye molecules are excited by the strong red lines of a Kr^+ laser (CR 3000 K). Using about 4 W of pumping power, the single mode operation is generally achieved at a power level of 30 mW.

C. Data acquisition

As explained the observable transitions do not appear on a zero background but as positive or negative peaks relative to a mean ionic current. It is thus necessary to use a normalization procedure in order to get rid of the fluctuations of this mean current. To do so, the light is alternately switched on and off every 0.5 s. The two signals—with and without light—are recorded alternately during 0.4 s and stored into different buffer counters. The difference between the two signals provides a good normalization, as can be seen on Fig. 5. Two other buffer counters are used to record the fluorescence signal of an auxiliary atomic beam of natural rubidium and a measurement of the relative frequency of the light given by the sigma-meter. All the data are transferred to a PDP 9 computer and recorded on magnetic tapes. Complete structures and relative positions of all isotopes and isomers which have been studied are displayed in Fig. 6.

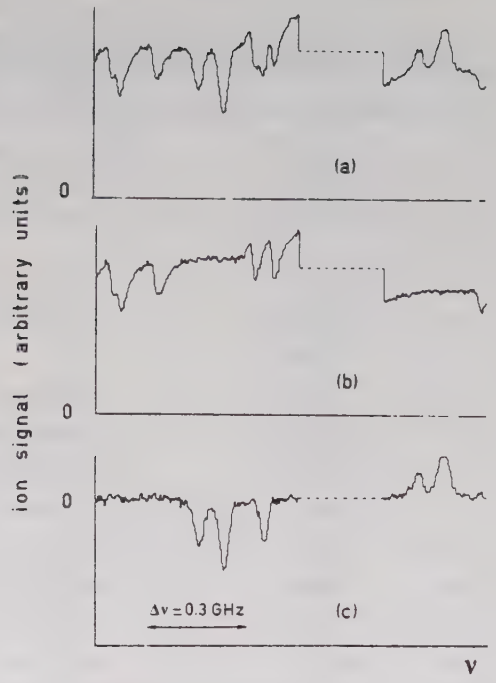


FIG. 5. Example of normalization of the data showing the five observable components of the D_2 line of ^{93}Rb. (a) Spectrum with light, (b) spectrum without light, (c) normalized spectrum obtained as the difference $a - b$.

III. RESULTS

A. Spins

The unknown spins of isotopes ^{86}Rb^m, ^{96,97}Rb have been measured. The spin of ^{98}Rb is probably zero since only one resonance, located very close to the expected center of gravity, has been observed. All the values are reported in Table I.

B. Magnetic moments

For each component of the resonance line, the center of gravity of the peak has been calculated and Zeeman shifts have been taken into account. The values of the A factor for the $^2S_{1/2}$ state and of A and B for the $^2P_{3/2}$ state have been deduced from the position of the resonances through a least-square-fit adjustment. All results are reported in Tables I and II as well as results from other experiments. Within the experimental error limit no hyperfine anomaly has been observed; the

TABLE I. Values of the spins and hyperfine constants $A(5s\ ^2S_{1/2})$ measured in this work and in others, and deduced values of the magnetic moments of the studied nuclei.

A	$T_{1/2}$	I	$A(5s\ ^2S_{1/2})$ (MHz) This work	Other results	μ (μ_N) This work
76	39 s	1	−701 (17)		−0.376 (9)
77	3.8 min	$\frac{3}{2}$	815.7 (5.1)	812.5 (3.4)[b]	0.656 8 (41)
78	17.5 min	0			
78m	6.3 min	4	1186.8 (1.0)	1195 (6)[b]	2.548 5 (21)
79	23 min	$\frac{5}{2}$	2502.0 (0.9)	2511 (9)[b]	3.357 9 (12)
80	30 s	1	−155.2 (3.2)	−155.957 (2)[c]	−0.083 3 (17)[h]
81	4.58 h	$\frac{3}{2}$	2557.6 (1.7)	2555.795 (20)[d,e]	2.059 5 (14)
81m	32 min	$\frac{9}{2}$	2317.3 (0.7)		5.598 0 (17)
82	1.25 min	1	1031 (10)	1031.6 (1.1)[c]	0.553 6 (54)
82m	6.2 h	5	563.6 (0.9)	562.560 48 (6)[d,e]	1.513 3 (24)
83	86.2 d	$\frac{5}{2}$	1061.7 (0.6)	1061.1 (1.9)[d,e]	1.424 9 (8)
84	33 d	2	−1233.7 (1.5)	−1233.264 (2)[d,e]	−1.324 6 (16)
84m	20.4 min	6	68.2 (4.6)		0.220 (15)
85	stable	$\frac{5}{2}$	1011.0 (1.0)	1011.910 813 (2)[d,e]	1.357 0 (10)
86	18.65 d	2	−1581.2 (1.5)	−1578.753 (1)[d,e]	−1.697 7 (16)
86m	1.018 min	6[a]	563.5 (0.3)		1.815 0 (10)
87	4.9×10^{10} yr	$\frac{3}{2}$	3415.9 (2.0)	3417.341 307 (1)[d,e]	2.750 6 (10)
88	17.7 min	2	476.6 (2.4)	±474.434 (7)[d,e]	0.511 7 (26)
89	15.4 min	$\frac{3}{2}$	2960.1 (0.9)	2964 (5)[f]	2.383 6 (7)
90	3.03 min	0			
90m	4.26 min	3	1003.4 (0.4)	1004.6 (3.4)[f]	1.615 98 (64)
91	58.0 s	$\frac{3}{2}$	2709.1 (1.7)	2712.5 (4.0)[f]	2.181 5 (15)
92	4.48 s	0			
93	5.85 s	$\frac{5}{2}$	1050.2 (1.2)	1047 (4)[g]	1.409 5 (16)
94	2.73 s	3	930.4 (1.1)		1.498 4 (18)
95	0.38 s	$\frac{5}{2}$	993.7 (2.5)		1.333 6 (34)
96	0.20 s	2[a]	1365.2 (1.6)		1.465 8 (17)
97	0.17 s	$\frac{3}{2}$[a]	2286.2 (2.6)		1.841 0 (21)
98	0.11 s	[0][a]			

[a] This work.
[b] See Ref. 41.
[c] R. Neugart, private communication.
[d] See Ref. 13.
[e] See Ref. 14.
[f] See Ref. 42.
[g] W. Klempt, J. Bonn, and R. Neugart, Phys. Lett. 82B, 47 (1979).
[h] A direct measurement has also been performed by R. Neugart *et al.* (see c), which provides $\mu = -0.0836\ (6)\ \mu_N$.

TABLE II. Values of the hyperfine constants $A(5p\ ^2P_{3/2})$ and $B(5p\ ^2P_{3/2})$ measured in this work and in others, and deduced spectroscopic quadrupole moments for the studied nuclei.

A	$A(5p\ ^2P_{3/2})$ (MHz) This work	$B(5p\ ^2P_{3/2})$ (MHz) This work	Other results	Q_s (b) This work
76	−18.0 (10.5)	36.0 (14.1)		0.38 (0.15)
77	19.1 (1.5)	65.3 (3.0)		0.695 (32)
78				
78*m*	29.4 (0.5)	76.5 (3.7)		0.814 (39)
79	62.0 (0.4)	−9.2 (2.1)		−0.098 (22)
80	−1.8 (2.3)	32.7 (1.9)		0.348 (20)
81	63.8 (0.8)	37.4 (2.2)		0.398 (23)
81*m*	57.9 (0.4)	−69.8 (5.4)		−0.743 (57)
82	26.8 (3.2)	17.9 (6.8)		0.190 (72)
82*m*	14.0 (0.6)	94.6 (11.2)		1.01 (0.12)
83	26.5 (0.4)	18.4 (2.1)	24 (9)[a]	0.196 (22)
84	−30.1 (0.8)	−1.4 (3.3)	0.0 (1.9)[a]	−0.015 (35)
84*m*	1.2 (1.0)	54 (26)		0.57 (0.27)
85	25.3 (0.4)	21.4 (4.0)	26.032 (70)[b]	0.228 (43)
86	−39.0 (0.8)	18.1 (3.0)	18.6 (2.8)[a]	0.193 (32)
86*m*	14.3 (0.4)	34.7 (8.9)		0.369 (95)
87	84.29 (0.50)	12.2 (2.0)	12.611 (70)[b]	0.130 (21)
88	9.4 (2.3)	−1.1 (9.0)		−0.012 (96)
89	72.6 (1.1)	13.5 (2.4)		0.144 (26)
90				
90*m*	25.3 (0.4)	19.2 (4.2)		0.204 (45)
91	66.9 (1.1)	14.5 (2.4)		0.154 (26)
92				
93	25.8 (0.7)	16.6 (3.8)		0.177 (40)
94	23.2 (0.6)	15.3 (4.7)		0.163 (50)
95	24.0 (0.9)	19.8 (6.1)		0.211 (65)
96	32.9 (1.3)	23.1 (5.3)		0.246 (56)
97	55.2 (1.8)	54.6 (4.1)		0.581 (44)
98				

[a] See Ref. 35.
[b] See Ref. 13.

ratio $A(^2S_{1/2})/A(^2P_{3/2})$ is found to be fairly constant. All magnetic moments deduced from the measurements of $A(^2S_{1/2})$ are reported in Table I. The following well known formula has been used:

$$\frac{\mu^x}{I^x}=\frac{\mu^{87}}{I^{87}}\ \frac{A(^2S_{1/2})^x}{A(^2S_{1/2})^{87}}$$

with

$$A(^2S_{1/2})^{87}=3417.341\,307(2)\ \text{MHz (Ref. 13)},$$

$$\mu^{87}=2.751\,816(2)\ \mu_N\ \text{(Ref. 14)},$$

$$I^{87}=\tfrac{3}{2}\,.$$

Our experimental method also gives the sign of the magnetic moment.

C. Quadrupole moments

The spectroscopic quadrupole moment Q_{hfs} is deduced from the measured value of $B(^2P_{3/2})$ through the usual formula

$$B=\frac{2}{5}\frac{e^2Q_{hfs}}{hc}\langle r_e^{-3}\rangle R_r\ (\text{cm}^{-1})\,.$$

According to the study made in Ref. 15 which shows that the Hartree-Slater calculation gives the best results for magnetic moments of rubidium isotopes, we have used the $\langle r_e^{-3}\rangle$ value given there for the $5p$ level, taking into account the relativistic correction R_r: $\langle r_e^{-3}\rangle R_r=0.796$ a.u. Antishielding correction[16] has also been applied to all final values Q_s in Table II, using

$$Q_s=\frac{1}{1-R}Q_{hfs}=0.796Q_{hfs}=1.064\times10^{-2}B$$

with B in MHz and Q_s in barns. To obtain the intrinsic quadrupole moment of the nucleus (Q_0) from the measured static quadrupole moment (Q_s) we use the projection formula[9]

$$Q_0=\frac{(I+1)(2I+3)}{I(2I-1)}Q_s\,.$$

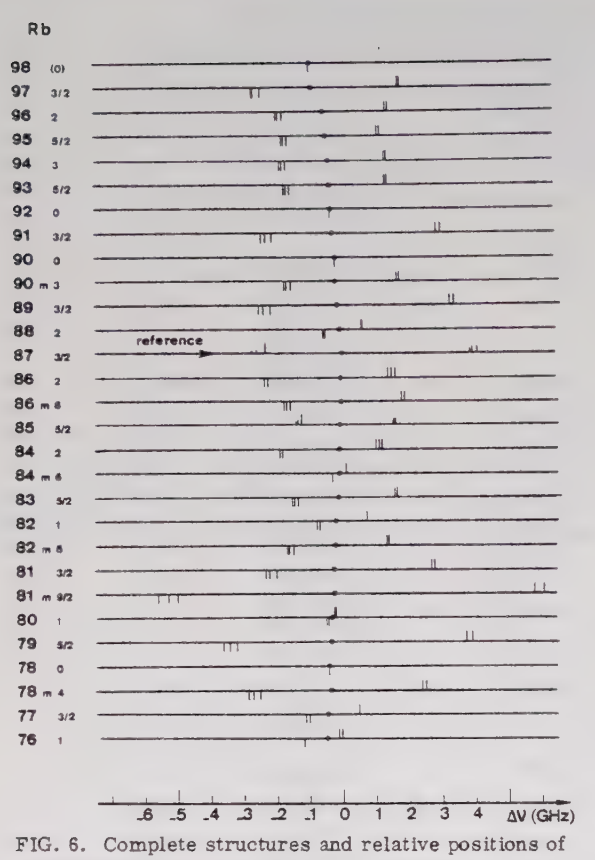


FIG. 6. Complete structures and relative positions of all studied isotopes and isomers. The different nuclei are indicated with their mass number (m is for an isomer) and with their measured nuclear spin. The dots represent the center of gravity of the line structures. For the stable isotopes (mass number 85 and 87), because of the fluorescence detection, all components appear as positive ones.

This formula is expected to hold only in the case of axially symmetric and strongly deformed nuclei.

D. Isotope shifts

From the determination of the hfs constants and spins, it is straightforward to deduce the position of the center of gravity of the D_2 line of an isotope A, which is compared to the one of the reference spectrum of isotope A' simultaneoulsy recorded, i.e., ^{87}Rb. The results are reported in Table III. The quoted errors take into account the consistency between the results obtained from each hyperfine component of the line. By subtracting from the observed isotope shift $\Delta\nu^{AA'}$ the normal mass shift[9,10] $\Delta\nu_{\text{nms}}$ and taking a zero value for the specific mass shift $\Delta\nu_{\text{sms}}$ (see below) one obtains the volume shift $\Delta\nu_{\text{vol}}^{AA'}$ reflecting the change in the mean square radius $\delta\langle r^2\rangle$ of the nuclear charge distribution. The proportionality between $\Delta\nu_{\text{vol}}^{AA'}$ and $\delta\langle r^2\rangle^{AA'}$ is given by a factor F (Ref. 17):

TABLE III. Values of the measured isotope shifts and deduced variations of the mean square charge radius of the studied nuclei using $\Delta\nu_{\text{sms}}=0$ and $F=-650$ MHz/fm^2.

	$\delta\nu^{A-87}$		$\delta\langle r^2\rangle^{A-87}$	
	This work	Other work	This work	Other work
76	−494 (17)		0.220 (27)	
77	−498.6 (4.5)		0.2831 (69)	
78	−478.4 (1.5)		0.3060 (23)	
78m	−403.8 (1.7)		0.1912 (26)	
79	−391.6 (1.5)		0.2249 (23)	
80	−352.8 (4.4)		0.2166 (68)	
81	−289.9 (1.4)		0.1698 (22)	
81m	−270.4 (1.4)		0.1398 (22)	
82	−233.7 (4.2)		0.1322 (65)	
82m	−233.5 (3.8)		0.1319 (58)	
83	−150.1 (1.0)		0.0512 (15)	
84	−91.6 (2.1)		0.0078 (32)	
84m	−84 (10)		0.004 (16)	
85	−80.1 (1.4)	−75.2 (3.0)[a]	0.0355 (22)	0.0279 (46)[a]
		−79.8 (3.0)[b]		0.0350 (46)[b]
86	−45.8 (2.0)		0.0271 (31)	
86m	−32.1 (2.3)		0.0060 (35)	
87	0		0	
88	−61.0 (5.1)		0.1364 (78)	
89	−143.7 (2.0)		0.3051 (31)	0.313 (12)[c]
90	−197.7 (5.2)		0.4289 (80)	0.418 (12)[c]
90m	−188.6 (2.0)		0.4149 (31)	
91	−255.8 (2.3)		0.5580 (35)	0.564 (12)[c]
92	−320.4 (5.2)		0.6963 (80)	0.685 (12)[c]
93	−371.5 (2.1)		0.8130 (32)	0.797 (12)[c]
94	−414.7 (2.3)		0.9167 (35)	
95	−495.9 (3.8)		1.0781 (56)	
96	−528.3 (4.8)		1.1637 (74)	
97	−879.7 (4.0)		1.7391 (62)	
98	−910 (10)		1.821 (15)	

[a] See Ref. 21.

[b] J. R. Beacham and K. L. Andrew, J. Opt. Soc. Am. 61, 231 (1971).

[c] W. Klempt, J. Bonn, and R. Neugart, Phys. Lett. 82B, 47 (1979). The values in this table have been calculated using $F=-650$ MHz/fm^2 instead of $F=-690$ MHz/fm^2.

$$\Delta\nu_{\text{vol}}^{AA'}=F\times\delta\langle r^2\rangle^{AA'}$$

with

$$F=\frac{\pi a_0^3}{Z}\times\beta_s\times|\Psi_s(0)|^2\ f(Z)\,.$$

β_s is a screening factor due to the change in the wave functions of the inner closed shell electrons induced by the valence electron as it changes from $5s$ to $5p$. It has been calculated for Na (Ref. 18) and Cs.[19] As both values are found to be equal to 1.1, we have adopted this value for Rb too. A nonrelativistic value for the charge density $|\Psi_s(0)|^2$ of the $5s$ electron at the nucleus has been extracted from the ground state hyperfine structure of ^{85}Rb (Ref. 9): $|\Psi_s(0)|^2=2.05\ a_0^{-3}$. $f(Z)$, which

takes into account the relativistic corrections to $|\Psi_s(0)|^2$ as well as the finite nuclear charge distribution, has been calculated using a formula derived by Babushkin,[20] as $f(Z) = -3398$ MHz/fm^2. Finally one obtains $F = -650$ MHz/fm^2. The values obtained for $\delta\langle r^2\rangle$, taking ^{87}Rb as a reference, are reported in Table III.

The assumption that $\Delta\nu_{sms} \sim 0$ was made *a priori* following the discussion by Brechignac *et al.*,[21] who suggested that it might be very similar to that of Sr II which is known to be very small (-0.05 $\Delta\nu_{sms}$). It is confirmed *a posteriori* since Fricke and his collaborators have recently performed an absolute measurement of the charge radii of the natural rubidium isotopes. They have found, as a preliminary value, $\delta\langle r^2\rangle^{85-87} = 0.037$ fm^2,[22] which is in excellent agreement with the value that we have obtained (0.036 fm^2) using $\Delta\nu_{sms} = 0$.

The variation of $\delta\langle r^2\rangle^{A-87}$ versus neutron number N is shown on Fig. 7. Clearly this plot exhibits three different regions corresponding to the neutron numbers $N \leq 50$, $50 < N < 60$, and $N \geq 60$. For $N = 50$ one observes a drastic change in the slope of the curve, while at $N = 60$ a sudden jump occurs. These two features will be discussed in detail below.

IV. DISCUSSION

The normal behavior expected for $\langle r^2\rangle$ is an increase with mass number A. However on Fig. 7, from ^{78}Rb to ^{87}Rb—i.e., up to the closure of the neutron shell at $N = 50$—the mean square radius $\langle r^2\rangle$ of the nuclear charge distribution decreases when neutrons are added. Such a trend had already been observed for stable Kr isotopes from $N = 42$ to 50 (Ref. 23) and for $^{85-87}$Rb.[21] It also occurs for calcium isotopes when filling up the neutron shell at $N = 28$.[24-26] These variations of $\langle r^2\rangle$ reflect both the changes in volume of the nucleus when neutrons are added and the departures from spherical symmetry.

For a spherical nucleus having approximately the same number of protons and neutrons, the charge radius may be expressed using the standard formula where the nucleus is considered as a liquid drop:

$$\langle r^2\rangle_{sph} = \langle r^2\rangle_{std} = \tfrac{3}{5}(r_0 A^{1/3})^2,$$

with $r_0 = 1.2$ fm. In the case of a quadrupole deformation at constant volume, characterized by the parameter β, one has

$$\langle r^2\rangle = \left(1 + \frac{5}{4\pi}\langle\beta^2\rangle\right)\langle r^2\rangle_{sph}.$$

The total change in $\langle r^2\rangle$ between two neighboring isotopes can be expressed as

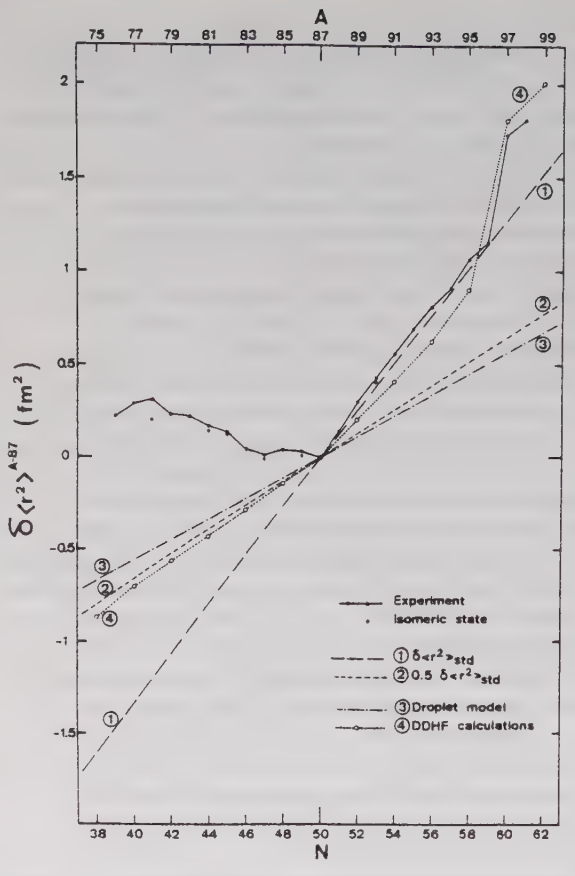


FIG. 7. Variation of the mean square nuclear charge radius relative to ^{87}Rb. The experimental values are compared to values from the standard formula (1) and its derived formula with $\rho = 0.5$ (2), from the droplet model (3), and from DDHF calculations (4).

$$\delta\langle r^2\rangle = \delta_{sph}\langle r^2\rangle + \frac{5}{4\pi}\delta(\langle\beta^2\rangle\langle r^2\rangle_{sph})$$
$$= \delta_{sph}\langle r^2\rangle + \delta_\beta\langle r^2\rangle .$$

However, as we are dealing with the mean square value of the charge radius a nonzero value of $\langle\beta^2\rangle$ may also correspond to dynamical vibrations of the nucleus.

In order to extract $\delta_\beta\langle r^2\rangle$ from the observed $\delta\langle r^2\rangle$ variation, first one has to evaluate $\delta_{sph}\langle r^2\rangle$. The simplest way would be to follow the standard formula and to use

$$\delta_{sph}\langle r^2\rangle = \delta\langle r^2\rangle_{std}$$
$$= \frac{2}{3}\frac{\delta A}{A}\langle r^2\rangle_{std}.$$

However, this formula holds only if neutrons and protons are added together. When neutrons only are added, it is well known that $\langle r^2\rangle$ increases more slowly. This is generally taken into account[27] by assuming that

$$\delta_{sph}\langle r^2\rangle = \rho\delta\langle r^2\rangle_{std},$$

with $0<\rho<1$, and experiment shows that $\rho\sim0.5$ gives a good overall fit. Another possibility for evaluating $\delta\langle r^2\rangle$ is to use the values of R_z obtained by Myers in the droplet model.[28]

All these $\delta_{sph}\langle r^2\rangle$ evaluations are nearly linear with δA. On Fig. 7, $\delta_\beta\langle r^2\rangle$ is the difference between the experimental data and the values of $\delta_{sph}\langle r^2\rangle$ deduced by the preceding formulas. In the simple model of odd-even and odd-odd Rb nuclei, the odd protons and neutrons are moving around the corresponding Kr core. The root mean square deformation β_{rms} indicating deformation or vibration amplitude for Kr and Sr nuclei are calculated either from $B(E_2)$ measurements[29] as in Ref. 30 or, when not available, from E_{2^+} values[29] through the Grodzins formula.[31] Figure 8 shows the plot of the values obtained versus the neutron number N. The deformation trend in the sequence of Rb nuclei is expected to be similar. Therefore it is possible to estimate $\delta_\beta\langle r^2\rangle$. It thus appears that it is impossible to fit the experimental results in both regions—before and after the shell closure—by a unique formula for $\delta_{sph}\langle r^2\rangle$. As shown in Fig. 9, a good agreement may be obtained by using $\rho\sim0.25$ for $N<50$ and $\rho\sim0.8$ for $N>50$. This means that even for spherical nuclei the closure of the neutron shell induces a strong change of the slope of $\delta\langle r^2\rangle^{A-87}$.

Qualitative indications of this shell effect had been found in a systematic study of experimental rms charge radii by Angeli *et al.*[32] However neither the semi-empirical models[27,28] nor the recent *ab initio* calculations performed by Angeli *et al.*[33]

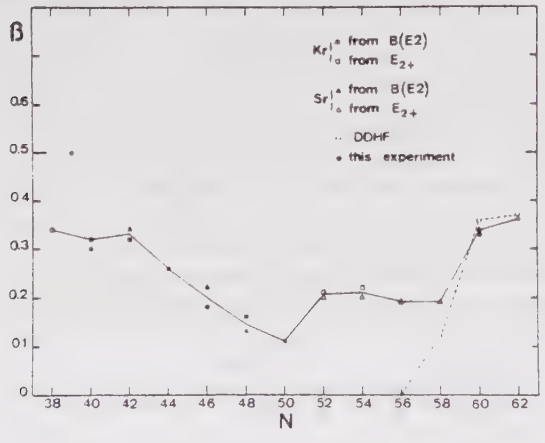


FIG. 8. Values of the deformation parameter β for Kr and Sr isotopes versus N. The experimental values are deduced either from $B(E_2)$ or E_{2^+} measurements in even-even isotopes and compared to the values calculated by the DDHF method. The values deduced from our measurements for ^{76,77,97}Rb are also indicated (see text for discussion).

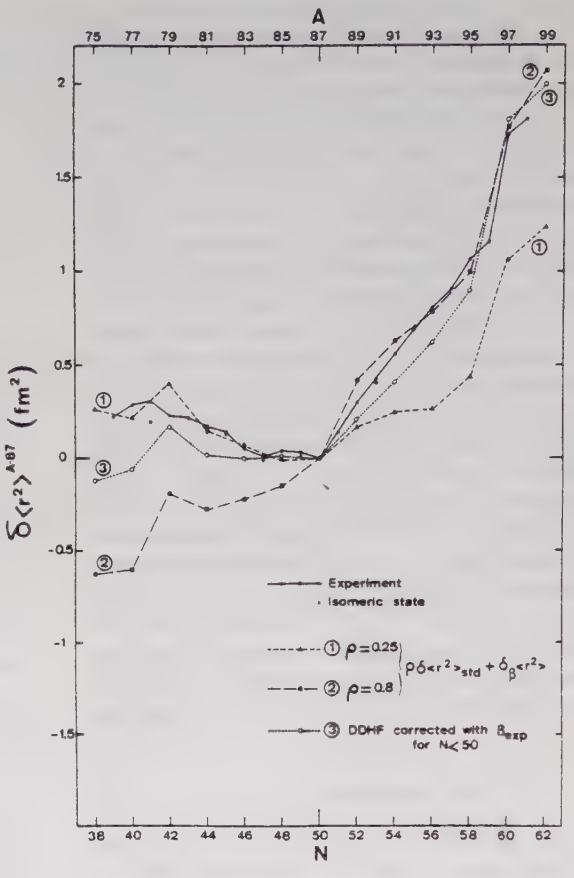


FIG. 9. Variation of the mean square nuclear charge radius relative to ^{87}Rb. The modified standard formula corrected by taking into account the experimental β values is shown for $\rho=0.25$ and $\rho=0.8$, which, respectively, best fits the experimental data in the region below or above $N=50$. The DDHF calculation corrected for $N<50$ is also shown.

include any shell effect. A more sophisticated treatment is thus needed. Since our measurements, Campi and Epherre have performed *ab initio* density dependent Hartree-Fock calculations (DDHF) for even-even Kr and Sr isotopes.[34] Rotational deformations are included in such calculations but not the vibrations. The agreement is quite good for $N>50$ (Fig. 7) while for $N<50$ both $\delta\langle r^2\rangle$ and β values disagree (Figs. 7 and 8). The DDHF calculation gives $\beta=0$ for $N<50$ while the experimental β values are not zero. Therefore the calculated $\delta\langle r^2\rangle$ values may be corrected as was done for the semi-empirical laws. The resulting curve reported on Fig. 9 fits relatively well all the experimental values, showing that the shell effect for spherical nuclei is well indicated by the DDHF method. Campi and Epherre suggested that the experimental β values were not reproduced for $N<50$ by DDHF because they are due to

zero point quadrupolar vibrations. Indeed a vibrational behavior has already been established for $N=46-49$.[35] For lower values of N, the situation is more intricate. Quasirotational bands are observed in many cases together with β values around 0.3 indicating transitional nuclei for $N=40-42$.[36] A region of strong deformation could even exist around $N=38$.[37] If we apply the projection formula to the Q_s values obtained for the lightest isotopes, i.e., ^{77,76}Rb, we obtain, respectively, $\beta_{rms}=0.45$ and 0.5. These very high values could indicate that ^{77,76}Rb are strongly deformed rotational nuclei. However, it does not seem to be the case for their isotones ^{74}Kr and ^{76}Kr or ^{78}Sr since β is smaller ($\sim$0.33) and E_{4^+}/E_{2^+} is only 2.5 (Ref. 29) instead of 3.3 for a pure rotor.

For $N \geq 60$ the onset of a large deformation already deduced from the Rb mass measurements[6] is clearly confirmed. While from $N=50$ to 59, the nuclei are nearly spherical and exhibit a smooth increase of $\langle r^2 \rangle$, the observed variation between $N=59$ and 60 is about 10 times larger than the neighboring differences. Such a deformation has also been observed in this region for the Sr isotopes by E_{2^+}, E_{4^+}, and $B(E_2)$ measurements. The values of the ratio E_{4^+}/E_{2^+} for $^{98}Sr_{60}$ (3.0) (Ref. 38) and $^{100}Sr_{62}$ (3.2) (Ref. 39) are very near the theoretical one (3.3) corresponding to a pure rotational structure. As a consequence, the value of the projecting factor for Q_s has to be right for ^{97}Rb. This is verified since we obtain $\beta=0.33$, while $B(E_2)$ measurements[39] provide $\beta=0.34$ for ^{98}Sr and $\beta=0.36$ for ^{100}Sr.

This rotational deformation is well reproduced by DDHF calculation which provides $\beta=0.36$ for $N=60$ and fits quite well the $\delta\langle r^2 \rangle$ jump (Fig. 7). It has also been found by the shell correction method developed by Ragnarsson[40] who has estimated $\beta=\pm 0.35$ ($\epsilon=0.3$).

By combining the different information that we obtained (I, μ, β), it may thus be possible to assign the corresponding Nilsson orbitals if these are not too mixed. This analysis has been performed for $^{77-95}$Rb by Ekström[41,42] using the known I and μ values. However, the case of ^{97}Rb is particularly interesting since we have measured I, μ, and Q_0 and one knows that it must correspond to a pure deformed Nilsson orbital. Using the particle + rotor model, Ragnarsson[40] has calculated μ for the different Nilsson orbitals corresponding to $I=\frac{3}{2}$ and $\epsilon=0.29$ (i.e., $Q_s=0.6$ b). He has obtained $\mu=0.7\ \mu_N$ for $[312,\frac{3}{2}]$, $\mu=1.9\ \mu_N$ for $[301,\frac{3}{2}]$, and $\mu=1.99\ \mu_N$ for $[431,\frac{3}{2}]$. Comparing those to $\mu_{exp}=1.84\ \mu_N$, the orbital $[312,\frac{3}{2}]$ is excluded. In order to choose between the two others, as a strong gap is found between them for $\epsilon=0.3-0.4$ (Ref. 40), the lower orbital $[431,\frac{3}{2}]$ seems to be much more probable.

V. CONCLUSION

These measurements covering a very long series of Rb isotopes allowed us to point out and to document the following different interesting nuclear features.

(i) The closure of the neutron shell at $N=50$ has an effect upon the $\delta\langle r^2 \rangle$ variation even for spherical nuclei; $\langle r^2 \rangle$ increases more rapidly when the neutrons start filling a new shell than when the shell is nearly closed.

(ii) A variation of $\delta\langle r^2 \rangle^{A-87}$ inverse of the one of A is observed before the closure of the neutron shell at $N=50$. This is due partly to the shell effect for spherical nuclei and partly to the existence of a deformation which could be vibrational.

(iii) The nuclei of the region $50<N<60$ are not far from spherical.

(iv) A large purely rotational deformation arises for $N=60$ which is very clearly revealed by a strong increase of $\delta\langle r^2 \rangle$ between $N=59$ and 60.

ACKNOWLEDGMENTS

It is a pleasure to acknowledge the able technical assistance of R. Fergeau and J. F. Kepinski for setting up the mass spectrometer, M. Jacotin for the electronics and hardware, G. Le Scornet for the software, B. Rosenbaum for the data acquisition system, C. Vialle for setting up the laser, J. Biderman for the special devices for neutralization and ionization, and R. Baronnet for building the reference atomic beam apparatus. We are indebted to the members of the ISOLDE group at CERN for providing high Rb yields and for their support and hospitality. One of us (S.B.) wishes to thank the Deutsche Forschungsgemeinschaft for a fellowship.

---

*Permanent address: University of Bonn, D-5300 Bonn, Germany.

†Permanent address: Service de Physique Atomique, Centre d'Etudes Nucléaires, Saclay, France.

[1]G. Huber, C. Thibault, R. Klapisch, H. T. Duong, J. L. Vialle, J. Pinard, P. Juncar, and P. Jacquinot, Phys. Rev. Lett. 34, 1209 (1975).

[2]G. Huber, F. Touchard, S. Büttgenbach, C. Thibault, R. Klapisch, H. T. Duong, S. Liberman, J. Pinard, J. L. Vialle, P. Juncar, and P. Jacquinot, Phys. Rev. C 18, 2342 (1978).

[3]G. Huber, F. Touchard, S. Büttgenbach, C. Thibault,

R. Klapisch, S. Liberman, J. Pinard, H. T. Duong, P. Juncar, J. L. Vialle, P. Jacquinot, and A. Pesnelle, Phys. Rev. Lett. 41, 459 (1978).
[4]S. Liberman, J. Pinard, H. T. Duong, P. Juncar, J. L. Vialle, P. Jacquinot, G. Huber, F. Touchard, S. Büttgenbach, A. Pesnelle, C. Thibault, R. Klapisch, and Collaboration ISOLDE, C. R. Acad. Sci. Ser. B286, 253 (1978).
[5]S. Liberman, J. Pinard, H. T. Duong, P. Juncar, P. Pillet, J. L. Vialle, P. Jacquinot, F. Touchard, S. Büttgenbach, C. Thibault, M. de Saint Simon, R. Klapisch, A. Pesnelle, and G. Huber, Phys. Rev. A 22, 2732 (1980).
[6]M. Epherre, G. Audi, C. Thibault, R. Klapisch, G. Huber, F. Touchard, and H. Wollnik, Phys. Rev. C 19, 1504 (1979).
[7]G. Huber, R. Klapisch, C. Thibault, H. T. Duong, P. Juncar, S. Liberman, J. Pinard, J. L. Vialle, and P. Jacquinot, C. R. Acad. Sci. Ser. B282, 119 (1976).
[8]H. T. Duong and J. L. Vialle, Opt. Commun. 12, 71 (1974).
[9]H. Kopfermann, *Nuclear Moments* (Academic, New York, 1958).
[10]P. Jacquinot and R. Klapisch, Rep. Prog. Phys. 42, 773 (1979).
[11]H. L. Ravn, S. Sundell, and L. Westgaard, Nucl. Instrum. Methods 123, 131 (1975).
[12]P. Juncar, and J. Pinard, Opt. Commun. 14, 438 (1975).
[13]G. H. Fuller, J. Phys. Chem. Ref. Data 5, 835 (1976).
[14]V. Shirley and C. M. Lederer in *Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay*, edited by E. Karlsson and R. Wäppling (Almquist and Wiksell, Stockholm, 1975), Vol. 2.
[15]A. Rosén and I. Lindgren, Phys. Scr. 6, 109 (1972).
[16]R. M. Sternheimer and R. F. Peierls, Phys. Rev. A 3, 837 (1971).
[17]K. Heilig and A. Steudel, At. Data Nucl. Data Tables 14, 613 (1974).
[18]J. Bauche, private communication.
[19]W. Fischer, private communication to Heilig and Steudel (Ref. 17).
[20]F. A. Babushkin, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 44, 1661 (1963) [Sov. Phys.—JETP. 17, 1118 (1963)].
[21]C. Bréchignac, S. Gerstenkorn, and P. Luc, Physica (Utrecht) 82C, 409 (1976).
[22]G. Fricke, private communication.
[23]H. Gerhardt, E. Matthias, H. Rinneberg, F. Schweider, A. Timmermann, R. Wenz, and P. J. West, Z. Phys. A 292, 7 (1979).
[24]R. Neumann, F. Träger, F. Kowalski, and G. zu Putlitz, Z. Phys. A 279, 249 (1976).
[25]H. W. Brandt, K. Heilig, H. Knöckel, and A. Steudel, Z. Phys. A 288, 241 (1978).
[26]H. D. Wohlfahrt, E. B. Shera, M. V. Hoehn, Y. Yamazaki, G. Fricke, and R. M. Steffen, Phys. Lett. 73B, 131 (1978).
[27]See Ref. 10, p. 786.
[28]W. D. Myers, Phys. Lett. 30B, 451 (1969); *Droplet Model of Atomic Nuclei* (Plenum, New York, 1977).
[29]*Table of Isotopes*, edited by C. M. Lederer and V. Shirley, 7th ed. (Wiley, New York, 1978).
[30]P. H. Stelson and L. Grodzins, Nucl. Data Tables A1, 21 (1965).
[31]L. Grodzins, Phys. Lett. 2, 88 (1962); J. Meyer-Ter-Vehn, Nucl. Phys. A249, 111 (1975); A249, 141 (1975).
[32]I. Angeli, and M. Csatlos, Nucl. Phys. A288, 480 (1977).
[33]I. Angeli, M. Beiner, R. Lombard, and D. Mas, J. Phys. G 6, 303 (1980).
[34]X. Campi and M. Epherre, Phys. Rev. C 22, 2605 (1980).
[35]F. Ackermann, I. Platz, and G. zu Putlitz, Z. Phys. 260, 87 (1973).
[36]E. Nolte and P. Vogt, Z. Phys. A 275, 33 (1975).
[37]E. Nolte, Y. Shida, W. Kutschera, R. Prestele, and H. Morinaga, Z. Phys. 268, 267 (1974).
[38]H. Wollnik, F. K. Wohn, K. D. Wünsch, and G. Jung, Nucl. Phys. A291, 355 (1977).
[39]R. E. Azuma, G. L. Borchert, L. C. Carraz, P. G. Hansen, B. Jonson, S. Mattsson, O. B. Nielsen, G. Nyman, I. Ragnarsson, and H. L. Ravn, Phys. Lett. 86B, 5 (1979).
[40]I. Ragnarsson, Symposium on Future Directions in Studies of Nuclei far from Stability, Nashville, Tennessee (1979).
[41]C. Ekström, S. Ingelman, G. Wannberg, and M. Skarestad, Nucl. Phys. A311, 269 (1978).
[42]C. Ekström, L. Robertsson, G. Wannberg, and J. Heinemeier, Phys. Scr. 19, 516 (1979).

ANNEXE VIII

Nuclear Physics A367 (1981) 1–12
© North-Holland Publishing Company

HYPERFINE STRUCTURE AND ISOTOPE SHIFT OF THE D_2 LINE OF $^{118-145}$Cs AND SOME OF THEIR ISOMERS

C. THIBAULT, F. TOUCHARD, S. BÜTTGENBACH *, R. KLAPISCH and M. DE SAINT SIMON

Laboratoire René Bernas du Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse, 91406 Orsay, France

H. T. DUONG, P. JACQUINOT, P. JUNCAR, S. LIBERMAN, P. PILLET, J. PINARD and J. L. VIALLE

*Laboratoire Aimé Cotton **, Centre National de la Recherche Scientifique II, 91405, Orsay, France*

A. PESNELLE *** and THE ISOLDE COLLABORATION

CERN, Geneva, Switzerland

and

G. HUBER

Gesellschaft für Schwerionenforschung, D-6100, Darmstadt 1, Germany

Received 9 February 1981

(Revised 14 April 1981)

Abstract: High-resolution laser spectroscopy has been performed on $^{118-145}$Cs and ^{119m,121m,122m,130m,134m,135m,136m,138m}Cs. The Cs nuclei have been produced either by spallation of La or by fission of U by the 600 MeV proton beam, from the SC at CERN. The hyperfine structures, spins, and isotope shifts have been measured. The charge radii changes deduced from the isotope shifts exhibit shell effects at $N = 82$, isomeric staggering for $N = 64, 66, 67$ and a strong odd-even staggering for all isotopes with $N < 82$.

E | NUCLEAR STRUCTURE $^{118-145,119m,121m,122m,130m,134m,135m,136m,138m}$Cs; measured hyperfine constants $A(6s^2S_{1/2})$, $A(6p^2P_{3/2})$, $B(6p^2P_{3/2})$, spins, isotope shifts. Deduced μ, quadrupole moment, rms charge radii, deformation parameter β. High-resolution laser spectroscopy on thermal atomic beams.

1. Introduction

Measurements of the hyperfine structure and isotope shift (IS) of the D_2 resonance line have been performed on rubidium [1]), cesium and francium [2]) isotopes produced by the on-line isotope separator ISOLDE at CERN.

* Permanent address: University of Bonn, D-5300, Bonn, Germany.
** Laboratoire associé à l'Université Paris Sud.
*** Permanent address: Service de Physique Atomique, Centre d'Etudes Nucléaires Saclay, France.

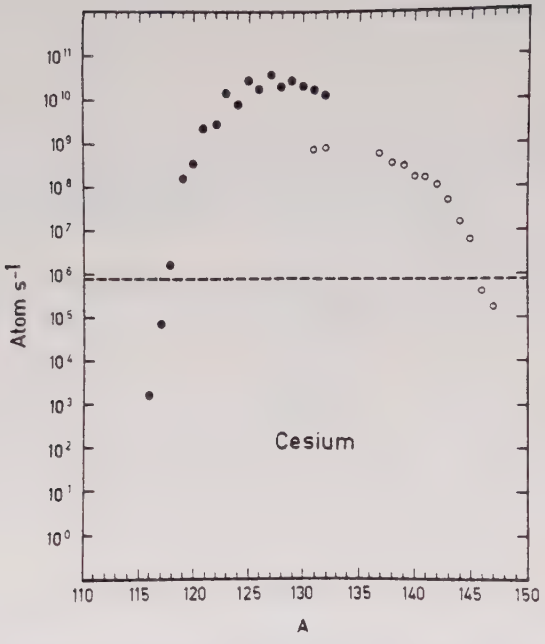


Fig. 1. ISOLDE production yields of cesium isotopes obtained by spallation of lanthanum (full circles) or by fission of uranium (open circles) using the 0.8 μA beam of 600 MeV protons from the SC at CERN (courtesy H. L. Ravn). The dotted line indicates our limit of sensitivity.

Isotope shift measurements of neutron deficient cesium isotopes, obtained by studying the $6s^2S_{\frac{1}{2}}$–$7p^2P_{\frac{1}{2}}$ blue D_1 line, have already been published [3]. We report here on the extensive measurements of isotope shifts and hyperfine structures of cesium isotopes obtained by studying the near infra-red D_2 line $6s^2S_{\frac{1}{2}}$–$6p^2P_{\frac{3}{2}}$ at 852.1 nm. The Cs nuclei have been produced either by spallation of lanthanum or by fission of uranium by the 600 MeV proton beam from the Synchrocyclotron at CERN (fig. 1). They have been separated in mass by the ISOLDE on-line facility before being transformed into a thermal atomic beam which interacts at a right angle with the light from a c.w. tunable dye laser. When tuned at resonance, the laser light may induce an optical pumping which is detected by magnetic deflection. The experimental set-up and procedure were the same as those described for rubidium [1]) except concerning the dye which was the so-called "HITC" dissolved in ethylene-glycol mixed with 10 % of dimethysulfoxyde (DMSO). All experimental details can be found in refs. [1–3]).

2. Results

Fig. 2 gives the complete structures and relative positions of the observed com-

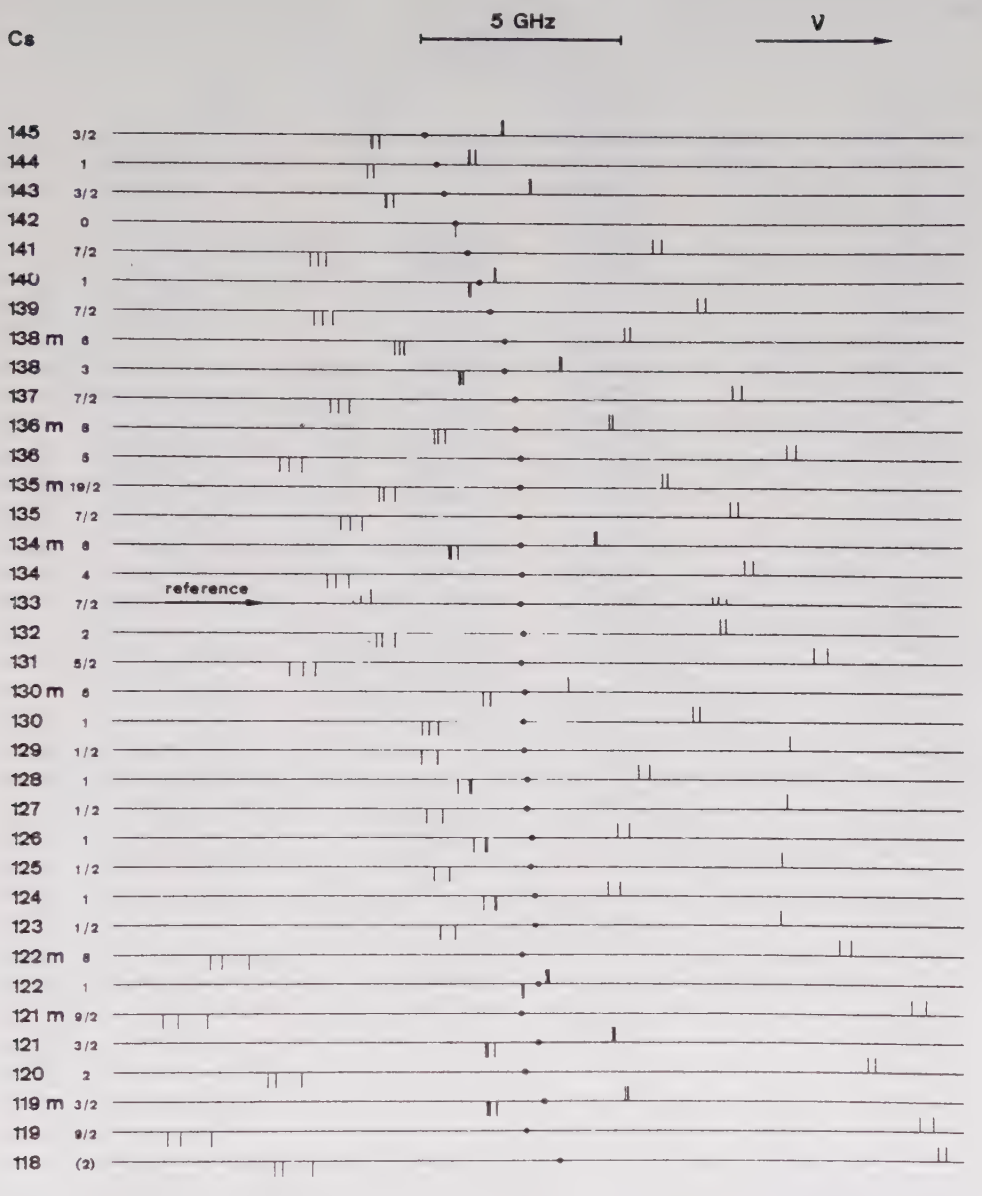


Fig. 2. Complete structures and relative positions of all studied isotopes and isomers. The different nuclei are indicated with their mass number (m is for an isomer) and with their measured nuclear spin. The dots represent the center of gravity of the line structures. For the stable isotope ^{133}Cs, because of the fluorescence detection, all components appear as positive ones.

TABLE 1

A	$T_{1/2}$	I	$A(6^2S_{1/2})$ [MHz]		μ [μ_n]
			this work	other results	this work
118	14 s	2 [a]	6678 (150)		4.29 (10)
119	36 s	$\frac{9}{2}$	3778.2(2.0)		5.46 (3)
119^m	28 s	$\frac{1}{2}$	1741.2(4.9)		0.838 (5)
120	64 s	2	6033.5(2.4)	6100 (50) [c]	3.87 (2)
121	2.09 m	$\frac{3}{2}$	1599.1(1.4)	±1630 (29) [d]	0.770 (4)
121^m	2.9 m	$\frac{9}{2}$	3745.0(4)		5.41 (3)
122	21 s	1	− 415.2(2.0)	± 413.240 (2) [d]	−0.1333(9)
122^m	4.2 m	8	1858.9(2)		4.77 (2)
123	5.8 m	$\frac{1}{2}$	8578.5(3.7)	8655 (45) [d]	1.377 (7)
124	30.8 s	1	2095.0(2.3)	2099.0 (1.6) [d]	0.673 (3)
125	45 m	$\frac{1}{2}$	8778.4(3.9)	8754 (40) [e]	1.409 (7)
126	1.64 m	1	2421.4(2.8)	2427.2 (2.6) [d]	0.777 (4)
127	6.2 h	$\frac{1}{2}$	9087.2(2.2)	9109 (45) [e]	1.459 (7)
128	3.62 m	1	3034.2(1.9)	3043.1 (3.5) [d]	0.974 (5)
129	32.3 h	$\frac{1}{2}$	9289.7(4.9)	9229 (30) [e]	1.491 (8)
130	29.9 m	1	4549.0(3.1)	4567.3 (7.9) [d]	1.460 (7)
130^m	3.7 m	5	391.7(1.0)	± 393.1 (4.5) [d]	0.629 (4)
131	9.69 d	$\frac{5}{2}$	4396.7(5)	4393.7917 (6) [e]	3.53 (2)
132	6.5 d	2	3465.1(9)	3459 (14) [e]	2.23 (1)
133	stable	$\frac{7}{2}$	2298.3(2)	2298.157943(5) [e]	
134	2.062 y	4	2328.2(5)	2327.472 (4) [e]	2.99 (2)
134^m	2.90 h	8	432.8(5)	433.479840(20) [e]	1.111 (6)
135	2.3 10^6 y	$\frac{7}{2}$	2430.9(5)	2431.006 (4) [e]	2.73 (1)
135^m	53 m	$\frac{19}{2}$	713.6(4)		2.18 (1)
136	13.1 d	5	2309.7(9)	2309.5 (5.1) [e]	3.71 (2)
136^m	19 s	8 [b]	513.6(6)		1.319 (7)
137	30.17 y	$\frac{7}{2}$	2527.6(1.5)	2528.882 (4) [e]	2.84 (1)
138	32.2 m	3	726.8(1.2)	728.3 (2.0) [f]	0.700 (4)
				728.0 (6) [g]	
138^m	2.9 m	6 [b]	889.5(4)		1.713 (9)
139	9.4 m	$\frac{7}{2}$	2401.2(1.0)	2400.0 (2.6) [f]	2.70 (1)
				2405 (8) [g]	
140	65 s	1	417.6(2.2)	417.1 (3.9) [f]	0.134 (1)
				± 417.6 (5) [g]	
141	25.1 s	$\frac{7}{2}$	2146.9(1.5)	2170 (8) [f]	2.41 (1)
				2155 (6) [g]	
142	1.70 s	0			
143	1.78 s	$\frac{3}{2}$	1807.8(1.9)		0.870 (4)
144	1.00 s	1	−1701.0(3.0)		−0.546 (3)
145	0.59 s	$\frac{3}{2}$	1627.5(1.9)		0.784 (4)

[a]) Assigned from the hyperfine structure shape.
[b]) Measured in this work.
[c]) C. Ekström *et al.*, Phys. Lett. **76B** (1978)565.
[d]) C. Ekström *et al.*, Nucl. Phys. **A292** (1977) 144.
[e]) G. H. Fuller, J. Phys. Chem. Ref. Data **5** (1976) 835.
[f]) J. Bonn *et al.*, Z. Phys. **A289** (1979) 227.
[g]) C. Ekström *et al.*, Phys. Scripta **19** (1979) 516.

TABLE 2
Hyperfine constants A and B of the excited state $6^2P_{3/2}$ for all studied Cs nuclei and deduced spectroscopic quadrupole moments

A	$A(6^2P_{3/2})$ [MHz]	$B(6^2P_{3/2})$ [MHz]		Q_s [b]
	this work	this work	other results	this work
118	147 (8)	266 (50)		1.9 (3)
119	82.7 (1.6)	404 (18)		2.8 (1)
119^m	38.4 (1)	130 (18)		0.9 (1)
120	132.2 (7)	207.3 (2.6)		1.45 (2)
121	35.3 (1)	119.8 (1.3)		0.838(9)
121^m	81.5 (5)	385.1 (7.3)		2.69 (5)
122	−10.7 (2.1)	− 27.2 (1.7)		−0.19 (1)
122^m	40.6 (2)	469.9 (11.2)		3.29 (8)
123	188.3 (1.6)			
124	45.7 (2.7)	−105.3 (4.2)		−0.74 (3)
125	192.2 (1.2)			
126	52.3 (1.5)	− 96.9 (2.3)		−0.68 (2)
127	200.3 (1.5)			
128	65.5 (1.4)	− 81.5 (1.1)		−0.570(8)
129	205.0 (2.3)			
130	100.7 (1.2)	− 8.5 (9)		−0.059(6)
130^m	8.6 [a]	207.4 (7.5)		1.45 (5)
131	97.5 (5)	− 95.7 (6.0)	−91.4 (8) [b]	−0.67 (4)
132	76.1 (4)	69.9 (3.0)	74.4 (1.1) [b]	0.49 (2)
133	50.15(8)	− 1.35(80)	− 0.38(18) [c]	−0.009(4)
134	51.3 (3)	54.9 (5.4)	56.8 (1.1) [b]	0.38 (4)
134^m	9.4 (3)	140 (11)		0.98 (8)
135	53.5 (4)	3.7 (3.5)	7.34(32) [b]	0.03 (2)
135^m	15.7 (4)	126.6 (9.4)		0.89 (7)
136	50.6 (5)	23.6 (8.9)	32.9 (1.9) [b]	0.17 (6)
136^m	11.5 (2)	106.2 (1.4)		0.74 (10)
137	54.9 (6)	4.6 (5.3)	7.48(20) [b]	0.03 (4)
138	15.9 (4)	17.1 (2.5)		0.12 (2)
138^m	19.9 (2)	− 55.6 (6.3)		−0.40 (3)
139	51.5 (6)	− 9.1 (4.7)		−0.06 (3)
140	9.9 (2.2)	− 14.4 (2.2)		−0.10 (2)
141	47.2 (1.1)	− 64 (10)		−0.45 (7)
142				
143	39.9 (1)	66.6 (4.0)		0.47 (3)
144	−36.0 (1.0)	43.5 (1.8)		0.30 (1)
145	35.9 (1)	88.8 (9.0)		0.62 (6)

[a]) Deduced from the ground state h.f.s.
[b]) F. Ackermann *et al.*, Nucl. Phys. **A248** (1975) 157.
[c]) S. Svanberg and S. Rydberg, Z. Phys. **227** (1969) 216.

ponents for all isotopes and isomers which have been studied. In tables 1 to 3 we reproduce the measured values of hyperfine interaction constants in both ground ($6s^2S_{\frac{1}{2}}$) and excited ($6p^2P_{\frac{3}{2}}$) states and the isotope shifts of the D_2 line. Our quoted error corresponds to one standard deviation.

TABLE 3
Measured isotope shift $\delta\nu^{133,A}$ and deduced variation of the mean square charge radius $\delta\langle r^2\rangle^{133,A}$ of all studied cesium isotopes

	$\delta\nu^{133,A}$ [MHz]		$\delta\langle r^2\rangle^{133,A}$ [fm^2]	
	this work	other results	this work	other results
118	984 (13)		−0.505 (6)	
119	144.3(6.0)		−0.136 (3)	
119^m	602.6(8.7)		−0.334 (4)	
120	116.9(3.2)		−0.1185(14)	
121	447.1(2.2)		−0.2555(9)	
121^m	18.5(1.8)		−0.0702(8)	
122	453.0(3.4)		−0.2524(15)	
122^m	26.7(4.1)		−0.0681(18)	
123	362.6(1.4)		−0.2078(6)	−0.2067(53) [f]
124	359.2(2.8)		−0.2008(12)	−0.1974(26) [f]
125	258.0(1.3)		−0.1517(6)	−0.1401(48) [f]
126	286.1(2.0)		−0.1586(9)	−0.1548(29) [f]
127	159.2(1.5)	177 (45) [d]	−0.0985(7)	−0.1060(200) [d]
				−0.0955(56) [f]
128	204.9(9)		−0.1131(4)	−0.1124(25) [f]
129	84.7(2.6)	84 (45) [d]	−0.0561(11)	−0.0560(200) [d]
				−0.0590(40) [f]
130	74.0(2.2)		−0.0465(10)	−0.0510(34) [f]
130^m	111.7(3.3)		−0.0628(14)	−0.0627(50) [f]
131	10.4(1.6)	−51 (12) [a]	−0.0141(7)	−0.0125(52) [a]
		8.4(6.0) [b]		−0.0132(26) [b]
				−0.0138(26) [f]
132	74.3(1.3)	28 (27) [a]	−0.0369(6)	−0.0170(110) [a]
				−0.0346(66) [f]
133	0		0	
134	33.1(2.5)	40.5(10.5) [a]	−0.0096(11)	−0.0126(43) [a]
		37.5(1.8) [c]		−0.0115(8) [c]
134^m	2.4(3.7)		0.0037(16)	
135	−36.4(2.0)	−25.5(10.5) [a]	0.0250(9)	0.0200(43) [a]
		−36.3(4.5) [c]		0.0250(19) [c]
135^m	−17.6(2.4)		0.0169(10)	
136	−6.8(3.3)	−120 (90) [a]	0.0168(14)	0.0660(390) [a]
136^m	−139.7(3.4)		0.0743(15)	
137	−147.4(2.5)	−151.5(9.0) [a]	0.0821(11)	0.0830(40) [a]
		−142.8(3.0) [c]		0.0800(13) [c]
				0.0791(26) [f]
138	−415.3(1.8)		0.2023(8)	0.2006(41) [e]
138^m	−415.1(1.6)		0.2022(7)	
139	−770.7(2.8)		0.3604(12)	0.3567(44) [e]
140	−1053.4(2.9)		0.4869(13)	0.4823(41) [e]
141	−1342.0(3.3)		0.6159(14)	0.5871(87) [e]
142	−1631.8(1.5)		0.7454(7)	0.7363(87) [e]
143	−1933.3(1.2)		0.8798(5)	
144	−2125.2(1.6)		0.9669(7)	
145	−2412.9(2.3)		1.0953(10)	

The magnetic moments are calculated using the well-known formula [4]:

$$\mu^x = \mu^{133} \frac{I^x}{I^{133}} \frac{A(^2S_{\frac{1}{2}})^x}{A(^2S_{\frac{1}{2}})^{133}}$$

with $\mu^{133} = 2.582$ (1) n.m. [ref. [5])], $I^{133} = \frac{7}{2}$ and $A(^2S_{\frac{1}{2}})^{133} = 2298.157943$ (5) MHz [ref. [6])].

The uncertainty in the hyperfine anomaly has been taken into account by adding a 0.5 % error.

For the evaluation of the electric spectroscopic quadrupole moment Q_s from $B(6p^2P_{\frac{3}{2}})$ the value of $\langle r^{-3}\rangle_{6p}$ is needed. We have taken the value $\langle r^{-3}\rangle_{6p} = 1.227$ atomic units coming from Hartree-Slater calculations which give the best fit to experimental values for magnetic interaction. However "quadrupole correction has to be handled with great precaution" as quoted from Rosen and Lindgren in ref. [7]), where general comments can be found on the calculations of $\langle r^{-3}\rangle$. To our knowledge, this is the latest paper on this subject. Finally taking into account the Sternheimer corrections [9]), we obtain:

$$Q_s[\mathrm{b}] = 6.998 \times 10^{-3} B(6p^2P_{\frac{3}{2}})\,[\mathrm{MHz}] \qquad \text{with } I \geqq 1.$$

For axially symmetric and strongly deformed nuclei the intrinsic quadrupole moment, Q_0, is related to Q_s by:

$$Q_0 = \frac{(I+1)(2I+3)}{I(2I-1)} Q_s. \tag{1}$$

From this value one deduces the nuclear deformation $\langle\beta\rangle$ using the formula [10])

$$Q_0 \simeq \frac{3}{\sqrt{5\pi}} Z r_0^2 A^{2/3} \langle\beta\rangle \left(1 + \frac{1}{8}\sqrt{\frac{5}{\pi}}\langle\beta\rangle\right) \qquad \text{with } r_0 = 1.2 \text{ fm}.$$

The nuclear deformation can also be obtained from IS provided the volume shift is known. To extract the volume shift from the total IS, and consequently the change in the mean square charge radius $\delta\langle r^2\rangle$, it is necessary to evaluate the specific mass shift $\delta\nu_{\mathrm{s.m.s.}}$ in order to get rid of it. Ullrich and Otten [11]) have discussed this problem and concluded that $\delta\nu_{\mathrm{s.m.s.}} = (0 \pm 1)\delta\nu_{\mathrm{n.m.s.}}$ where $\delta\nu_{\mathrm{n.m.s.}}$ is the normal mass shift, easily calculable. We have adopted $\delta\nu_{\mathrm{s.m.s.}} = 0$. The change in $\langle r^2\rangle$ is deduced from the volume shift $\delta\nu_{\mathrm{v.s.}}^{A,A'}$ following the procedure used in ref. [12]).

$$\delta\nu_{\mathrm{v.s.}}^{A,A'} = F\delta\langle r^2\rangle^{AA'},$$

---

[a]) S. Ullrich and E. W. Otten, Nucl. Phys. **A248** (1975) 173.
[b]) H. Hühnermann and H. Wagner, Z. Phys. **216** (1968) 28.
[c]) H. Hühnermann and H. Wagner, Z. Phys. **199** (1967) 239.
[d]) R. Marrus *et al.*, Phys. Rev. **177** (1969) 122.
[e]) J. Bonn *et al.*, Z. Phys. **A289** (1979) 277.
[f]) G. Huber *et al.*, Phys. Rev. Lett. **41** (1978) 459.

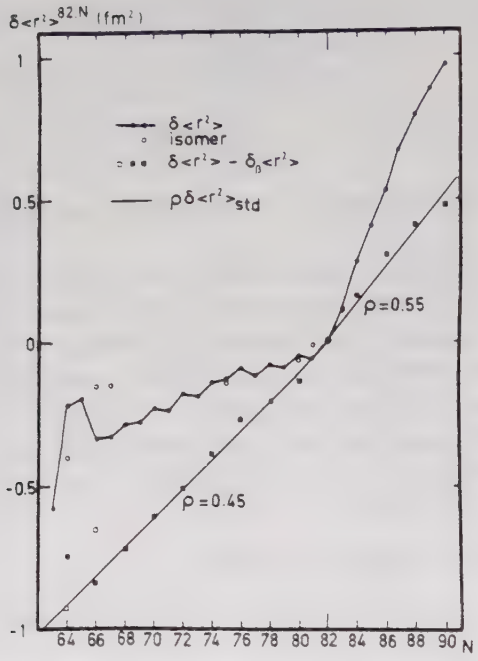


Fig. 3. Change in the mean square charge radius relative to ^{137}Cs. Deduced $\delta_{sph}\langle r^2\rangle^{A-137}$, and comparison with empirical formula $\rho(\langle r^2_{std}\rangle^{A} - \langle r^2_{std}\rangle^{137})$ are also shown.

where F is a purely electronic factor that we have calculated in the same way as in ref. [1]). We have obtained $F = -2313$ MHz/fm^2. The results are plotted in fig. 3. These variations of $\langle r^2\rangle$ reflect both the change in volume and the departure from spherical shape of the charge distribution of the nucleus when neutrons are added. The total change in $\langle r^2\rangle$ between two isotopes A and A′ can be expressed, in the same way as in refs. [1,2]), by the sum of two terms:

$$\langle r^2\rangle^{A} - \langle r^2\rangle^{A'} = \delta\langle r^2\rangle^{AA'} = \delta_{sph}\langle r^2\rangle^{AA'} + \frac{5}{4\pi}\,\delta(\langle r^2\rangle_{std}\langle\beta^2\rangle)$$

$$= \delta_{sph}\langle r^2\rangle^{AA'} + \delta_{\beta}\langle r^2\rangle^{AA'}, \qquad (2)$$

with $\langle r^2\rangle^{A}_{std} = \frac{3}{5}(r_0 A^{\frac{1}{3}})^2$, $r_0 = 1.2$ fm. The first term $\delta_{sph}\langle r^2\rangle^{AA'}$ corresponds to the change in volume for a spherical nucleus when neutrons are added. The second, $\delta_{\beta}\langle r^2\rangle^{AA'}$, is related to the nuclear quadrupole deformation at constant volume, characterized by the parameter β.

The observed $\delta\langle r^2\rangle$ variation depends on two parameters ($\delta_{sph}\langle r^2\rangle$ and $\langle\beta^2\rangle^{\frac{1}{2}}$). In order to extract one of them from the experimental data one has first to evaluate the other one. This is done in the discussion below.

3. Discussion

From a qualitative point of view, nuclear shapes in the studied region have been predicted to be increasingly deformed when they get further from the shell closures [13]). For cesium isotopes, this means that the deformation will increase on both sides of $N = 82$. This prediction has been confirmed by different experiments. First, magnetic moments and spins have been measured by the ABMR technique [14,15]) and discussed in terms of either the strong coupling model for the deformed nuclei or the spherical shell model in the transition region. Second, by nuclear spectroscopy, the existence of $\Delta J = 1$ rotational bands built on the $\frac{9}{2}^+$ state for odd mass nuclei has been demonstrated [16]).

In this first part of the discussion we will try to evaluate the deformation parameter $\langle\beta^2\rangle^{\frac{1}{2}}$ for Cs isotopes in order to deduce $\delta_{\text{sph}}\langle r^2\rangle$ from the experimental results.

Values of a mean deformation parameter $\langle\beta^2\rangle^{\frac{1}{2}}$ may be deduced from B(E2) or E_{2^+} of the neighbouring elements Xe and Ba [ref. [17-20])]. These values are reported in fig. 4. The Cs deformation parameter $\langle\beta^2_{\text{Cs}}\rangle^{\frac{1}{2}}$ could be taken as $\langle\beta^2_{\text{Cs}}\rangle^{\frac{1}{2}} = \frac{1}{2}$

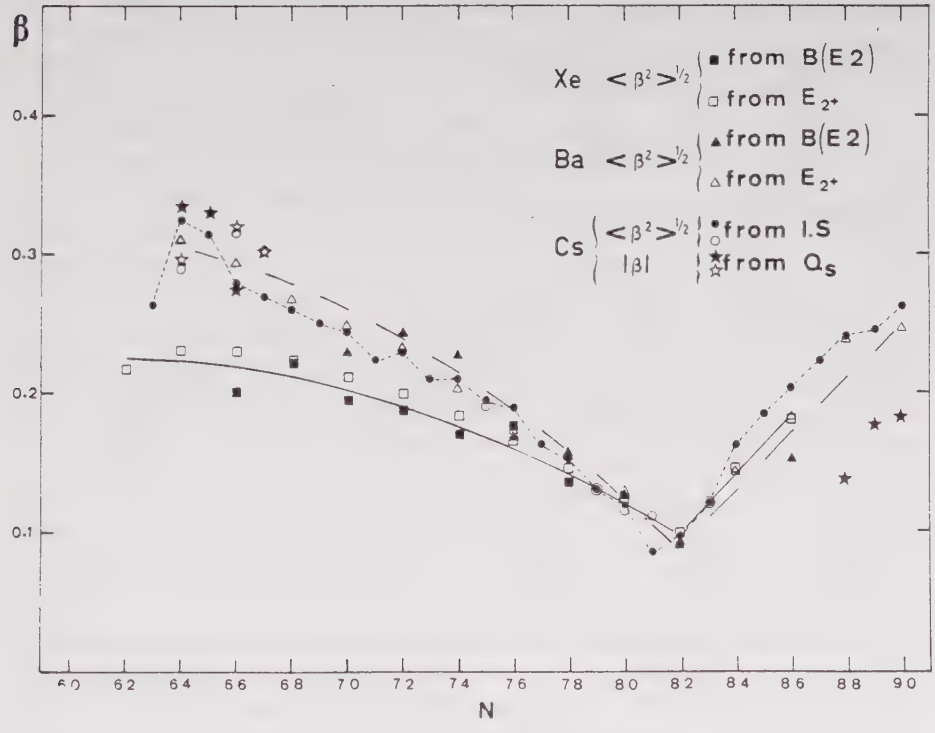


Fig. 4. Values of the deformation parameter $\langle\beta^2\rangle^{1/2}$ for Xe and Ba deduced from B(E2) and from E_{2^+}, and for Cs isotopes and isomers deduced from IS. Values of $\langle\beta\rangle$ deduced from Q_s are also given for some Cs isotopes (full symbols) and isomers (open symbols).

$[\langle\beta^2_{Xe}\rangle^{\frac{1}{2}}+\langle\beta^2_{Ba}\rangle^{\frac{1}{2}}]$ where the even-even Xe and Ba nuclei are the isotones of the considered Cs nucleus. Then through eq. (2) and using these $\langle\beta^2_{Cs}\rangle^{\frac{1}{2}}$ values one deduces the unknown $\delta_{sph}\langle r^2\rangle$ quantity.

The results obtained are plotted in fig. 3 and compared to the empirical formula [1,11]):

$$\delta_{sph}\langle r^2\rangle^{AA'} = \rho\,\delta\langle r^2\rangle^{AA'}_{std} = \rho(\langle r^2\rangle^{A}_{std} - \langle r^2\rangle^{A'}_{std}).$$

One can see that in the case of Cs isotopes this empirical formula fits quite well the experimental data with $\rho = 0.45$ for $N < 82$ and $\rho = 0.55$ for $N > 82$, which are both very near of 0.5. Below $N = 68$, deviations appear for ^{119,121m}Cs which may be interpreted as an extra deformation related to a $[404]\frac{9}{2}$ proton hole state [16]).

Inversely, let us now suppose that the quantity $\delta_{sph}\langle r^2\rangle$ is exactly given by the formula $\delta_{sph}\langle r^2\rangle^{AA'} = 0.5\,\delta\langle r^2\rangle^{AA'}_{std}$. Then, taking for ^{137}Cs the deformation parameter $\langle\beta^2\rangle \simeq 0.008$ deduced from B(E2) and from the energy E_{2^+} of the first 2^+ excited state [17–20]), the value of $\langle\beta^2\rangle^{\frac{1}{2}}$ for other Cs isotopes (and isomers) is extracted from the isotope shift measurements using formula (2). The results obtained are displayed in fig. 4. They are, of course, quite comparable to the values of $\langle\beta^2\rangle^{\frac{1}{2}}$ obtained for Xe and Ba.

Moreover, in the two extreme regions $N < 68$ and $N \geqq 88$ the ratio E_{4^+}/E_{2^+} for Xe or Ba nuclei is near the theoretical value $J(J+1)/J'(J'+1) = 4\times 5/2\times 3 = \frac{10}{3}$ [ref. [20])], indicating that the good rotor conditions are approached for these nuclei. As explained before, it is then possible to deduce Q_0 and thus $\langle\beta\rangle$ from Q_s for the Cs isotopes of these regions. The results are given in table 4 and reported on fig. 4.

The agreement between the β-values deduced from $\delta\langle r^2\rangle$ or from Q_s is quite

TABLE 4

Intrinsic quadrupole moments and deduced deformation coefficients. In the case of a pure rigid rotator, the ratio E_{4^+}/E_{2^+} is equal to $\frac{10}{3}$

N	Cs				Xe	Ba
	A	I	Q_0	$\langle\beta\rangle$	E_{4^+}/E_{2^+}	
64	119	$\frac{9}{2}$	5.1 (2)	0.336	2.40	2.96
64	119^m	$\frac{3}{2}$	4.5 (5)	0.296		
65	120	2	5.08(7)	0.331		
66	121	$\frac{3}{2}$	4.19(5)	0.274	2.47	2.89
66	121^m	$\frac{11}{2}$	4.93(9)	0.320		
67	122	1	−1.9 (1)			
67	122^m	8	4.7 (1)	0.303		
68	123	$\frac{1}{2}$			2.50	2.97
88	143	$\frac{3}{2}$	2.4 (2)	0.140		2.66
89	144	1	3.0 (1)	0.177		
90	145	$\frac{3}{2}$	3.1 (3)	0.182		2.84

good in the region $N < 68$, but not in the region $N \geqq 88$. However, in this last case, the relation $|\langle\beta\rangle| \leqq \langle\beta^2\rangle^{\frac{1}{2}}$ is satisfied. This probably means that these nuclei are vibrational.

The quantitative interpretation of the results is difficult, in view of the uncertainties in $\delta\nu_{\text{s.m.s.}}$. However, $\delta\nu_{\text{s.m.s.}}$ is expected to be very small as in the case of Rb [ref. [1])] where it is found to be nearly zero when taking into account the $\delta\langle r^2\rangle$ value from muonic atoms. At least a general trend can be picked up. When neutrons are added to or removed from the magic number $N = 82$, the deformation gently increases with a strong odd-even staggering in the neutron-deficient side. The variation of $\langle r^2\rangle$ is well reproduced with a unique value $\rho = 0.5$, while for Rb two different values were found to be necessary to fit the experimental data before and after the neutron shell closure [1]).

The most striking feature happens for very neutron deficient nuclei where it seems that two shapes co-exist in the form of a ground state and an isomeric one. The low spin states $^{119\text{m}}_{\text{g}}$Cs($I = \frac{3}{2}$), ^{121}Cs($I = \frac{3}{2}$) and ^{122}Cs($I = 1$) correspond to the smaller deformations ($\langle\beta^2\rangle^{\frac{1}{2}} \sim 0.3$) and to the shape predicted by a smooth extrapolation of $\delta\langle r^2\rangle$ while the high-spin states ^{119}Cs($I = \frac{9}{2}$), $^{121\text{m}}$Cs($I = \frac{9}{2}$), $^{122\text{m}}$Cs($I = 8$), and also ^{120}Cs($I = 2$) correspond to larger deformations ($\langle\beta^2\rangle^{\frac{1}{2}} \sim 0.34$). The relative change in deformation is about 10 %. It is gratifying that the isomer shift, which is independent of ρ and $\delta\nu_{\text{s.m.s.}}$, is well reproduced by the values of $|\langle\beta\rangle|$ as deduced from Q_s. Such an effect has already been observed for mercury isotopes and isomers [22–24]).

An extensive discussion of the collective properties of odd mass cesium isotopes, $^{119-133}$Cs, has been done in ref. [16]). The analysis of the $\Delta J = 1$ bands built on the $\frac{9}{2}^+$ state has led the authors to the conclusion that those nuclei have a prolate deformation. We confirm this feature by the positive sign of the measured quadrupole moments except for ^{122}Cs, where the use of formula (1) is certainly not valid for $I = 1$, as in ^{124,126,128}Cs.

Unlike the Rb case, most of the experimental data for Cs isotopes can approximately be reproduced using a simple model. But more theoretical calculations are still needed in order to obtain a quantitative interpretation of all data, e.g. spectroscopic quadrupole moments, odd-even staggering of $\langle r^2\rangle$ below $N = 82$.

It is a pleasure to acknowledge the able technical assistance of R. Fergeau and J. F. Kepinski for setting up the mass spectrometer, of M. Jacotin for the electronics and hardware, of G. Le Scornet for the software, of B. Rosenbaum for the data acquisition system, of C. Vialle for the optical set up, of J. Biderman for the special devices for neutralization and ionization, and of R. Baronnet for building the reference atomic beam apparatus.

We are indebted to the members of ISOLDE group at CERN for providing high Cs yields and for their support and hospitality. One of us (S.B.) wishes to thank the Deutsche Forschungsgemeinschaft for a fellowship.

References

1) C. Thibault, F. Touchard, S. Büttgenbach, R. Klapisch, M. de Saint Simon, H. T. Duong, P. Jacquinot, P. Juncar, S. Liberman, P. Pillet, J. Pinard, J. L. Vialle, A. Pesnelle and G. Huber, Phys. Rev. **C23** (1981) 2720
2) S. Liberman, J. Pinard, H. T. Duong, P. Juncar, P. Pillet, J. L. Vialle, P. Jacquinot, F. Touchard, S. Büttgenbach, C. Thibault, M. de Saint Simon, R. Klapisch, A. Pesnelle and G. Huber, Phys. Rev. **A22** (1980) 2732
3) G. Huber, F. Touchard, S. Büttgenbach, C. Thibault, R. Klapisch, S. Liberman, J. Pinard, H. T. Duong, P. Juncar, J. L. Vialle, P. Jacquinot and A. Pesnelle, Phys. Rev. Lett. **41** (1978) 459
4) H. Kopfermann, Nuclear moments (Academic-Press, New York, 1958)
5) V. Shirley and C. M. Lederer, Table of nuclear moments, in Hyperfine interactions studied in nuclear reactions and decay, Vol. 2 (Karlsson and Wäppling, ed. Almquist, 1975)
6) G. H. Fuller, J. Phys. Chem. Ref. Data **5** (1976) 835
7) A. Rosen and I. Lindgren, Phys. Scripta **6** (1972) 109
8) Case studies in atomic physics **4** (1974), 197, p. 222
9) R. M. Sternheimer and R. F. Peierls, Phys. Rev. **A3** (1971) 837
10) K. E. G. Löbner, M. Vetter and V. Hönig, Nucl. Data Tables **A7** (1970) 495
11) S. Ullrich and E. W. Otten, Nucl. Phys. **A248** (1975) 173
12) K. Heilig and A. Steudel, Atomic Data Nucl. Data Tables **14** (1974) 613
13) D. A. Arseniev, A. Sobiczewski and V. G. Soloviev, Nucl. Phys. **A126** (1969) 15;
I. Ragnarsson, A. Sobiczewski, R. K. Sheline, S. E. Larsson and B. Nerlo-Pomorska, Nucl. Phys. **A233** (1974) 329
14) C. Ekström, S. Ingelman, G. Wannberg and M. Skarestad, Nucl. Phys. **A292** (1977) 144
15) C. Ekström, L. Robertsson, G. Wannberg and J. Heinemeier, Phys. Scripta **19** (1979) 516
16) U. Garg, T. P. Sjoreen and D. B. Fossan, Phys. Rev. Lett. **40** (1978) 831; Phys. Rev. **C19** (1979) 217
17) C. M. Lederer and V. S. Shirley Table of isotopes, 7th ed. (Wiley, New York, 1978)
18) P. H. Stelson and L. Grodzins, Nucl. Data Tables **A1** (1965) 21
19) M. Sakaï and A. C. Rester, Atomic Data Nucl. Data Tables **20** (1977) 441
20) L. Grodzins, Phys. Lett. **2** (1962) 88;
J. Meyer-Ter-Vehn, Nucl. Phys. **A249** (1975) 111; 141
21) A. Bohr and B. R. Mottelson, Nuclear structure Vol. II, (Benjamin, New York, 1969) p. 24
22) J. Bonn, G. Huber, H. J. Kluge and E. W. Otten, Z. Phys. **A276** (1976) 203
23) C. Duke, H. Fischer, H. J. Kluge, H. Kremmling, T. Kuhl, and E. W. Otten, Phys. Lett. **60A** (1977), 303
24) P. Dabkiewicz, C. Duke, H. Fischer, T. Kuhl, H. J. Kluge, H. Kremmling, E. W. Otten and H. Schussler, J. Phys. Soc. Japan **44** (1978) 503

ANNEXE IX

PHYSICAL REVIEW A VOLUME 22, NUMBER 6 DECEMBER 1980

Laser optical spectroscopy on francium D_2 resonance line

S. Liberman, J. Pinard, H. T. Duong, P. Juncar, P. Pillet, J.-L. Vialle, and P. Jacquinot
Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II, 91405 Orsay, France

F. Touchard, S. Büttgenbach,* C. Thibault, M. de Saint-Simon, and R. Klapisch
Laboratoire René Bernas du Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse, 91406 Orsay, France

A. Pesnelle†
CERN, Geneva, Switzerland

G. Huber
Gesellschaft für Schwerionenforschung, D 6100 Darmstadt 1, Germany
(Received 14 January 1980)

A highly sensitive method of detection coupled with a laser atomic beam experiment using on-line-produced Fr isotopes, has permitted finding and measuring the first optical resonance line of this element and its wavelength: $\lambda = 717.97 \pm 0.01$ nm. A high-resolution optical study has been undertaken, which has led to the determination of the hyperfine structure and isotope shifts for isotopes of mass number 208 to 213.

I. INTRODUCTION

Among the heaviest elements which can be found in nature, francium was, until recently,[1] the only one for which no optical transition had ever been observed. Since its discovery in 1939,[2] many experiments have failed in observing these optical transitions. One may notice first that the longest-lived isotope ^{223}Fr, which corresponds to the natural one, has a half-life of 22 minutes and occurs in a weak (1.4%) α-decay branch of ^{227}Ac. Natural radioactivity thus gives rise to small quantities of francium atoms, corresponding at equilibrium to a total amount of less than 30 g of that element present at any moment in the earth's crust.

In addition the classical methods of optical spectroscopy have proved to be somewhat inadequate for this problem; on the one hand, in a cell, francium atoms would be associated with several other much more abundant radioactive species which would lead, in emission spectroscopy, to such an intricate spectrum that it would be hopeless to attribute one line to the francium element. On the other hand, chemical agressivity of this element would cause it to be adsorbed on the walls of the cell; its density would rapidly diminish in the active volume, and this would prevent success in a classical optical absorption experiment.

A new possibility arose recently at the CERN-ISOLDE on-line mass separator, which makes available a source of about 10^8 atoms per second of chemically and isotopically pure Fr isotopes,[3] by means of the spallation of uranium by 600-MeV protons. Such an amount of 10^8 atoms is quite sufficient for an experiment using laser atomic beam spectroscopy in a way similar to the one reported for the hyperfine spectroscopy of the long series of alkali atoms.[4] Let us recall that basically, the experiment uses singly ionized atoms delivered by the ISOLDE facility,[3] which are converted into thermal neutral atoms of an atomic beam after implantation on, and reevaporation from, the surface of an yttrium-coated tantalum tube heated to 1200 °C. Then the atoms of the beam interact through their resonance line with the light of a laser beam propagating perpendicularly to the direction of the atomic beam. For high-resolution purposes as was the case for Na (Ref. 4), Cs, (Refs. 4 and 5), and Rb (Ref. 5) isotopes, the laser light is provided by a single-mode tunable cw dye laser. The interaction with light induces an optical pumping between the two hyperfine sublevels of the ground state, and changes the relative populations of the magnetic sublevels corresponding to $m_J = +\frac{1}{2}$ and $-\frac{1}{2}$. These modifications are analyzed by a six-pole magnet which focuses atoms with $m_J = +\frac{1}{2}$ and defocuses the others, provided the atoms experience a strong-field region inside the magnet. The detection system is formed with a mass spectrometer and an ion counter.

The first step in such a program of Fr optical spectroscopy is obviously to locate the resonance line. Figure 1 summarizes the different predictions for the value of the wavelengths of the first two resonance lines, which are derived either from empirical extrapolations or from *ab initio* calculations. It appears that a reasonable range to be explored in order to find the first resonance transition (D_2 line) would extend be-

 © 1980 The American Physical Society

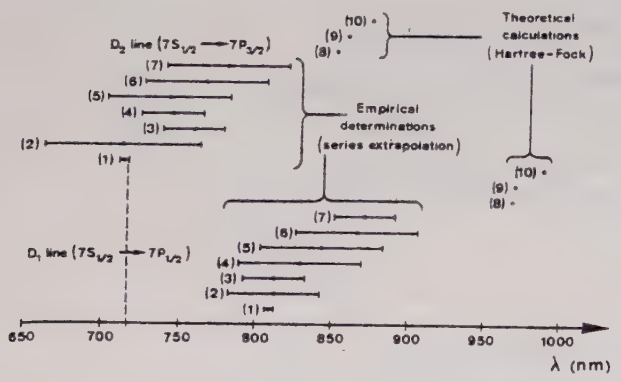


FIG. 1. Theoretical and semiempirical predictions of the wavelengths of D_1 and D_2 Fr lines with their estimated uncertainty bars. Points (1) and (2) correspond to extrapolation of the last elements of the alkali series compared to the Cu, Ag, Au series. This extrapolation is rather well established by comparison of correspondent singly ionized elements (Sr^+, Ba^+, Ra^+, and Zn^+, Cd^+, Hg^+). The other points are obtained by extrapolation of quantum defects all along the alkali series and singly ionized alkali-earths. (1) See Ref. 7; (2) J. F. Wyart (private communication); (3) K. T. Bainbridge, Phys. Rev. 34, 752 (1929); (4) H. Yagoda, Phys. Rev. 38, 2298 (1931); (5) the authors of present paper; (6) and (7) A. C. Muller, diplomarbeit, Mainz, 1977 (unpublished); H. J. Kluge (private communication); (8) and (9) M. Aymar (private communications); (10) J. P. Desclaux, thèse, Paris, 1971 (unpublished).

tween 700 and 800 nm. A suitable dye (oxazine 725) can be found for that spectral region. In order to find the line in a period of time compatible with reasonable experimental running conditions, it was thus necessary in a first experiment to use a low-resolution laser system. This experiment, which has permitted finding the Fr D_2 line and measuring its wavelength, is described in Sec. II. Having then located the position of that first resonance line, it became possible to perform high-resolution observations, enabling us to measure hyperfine structures and isotope shifts for several isotopes. This high-resolution part of the study is described in Sec. III.

II. SEARCH FOR AN OPTICAL TRANSITION IN *Fr*

As stated previously, in a low-resolution phase of the experiment a broadband excitation system is needed associated with a magnetic detection of optical resonances. It has been achieved using our already described experimental arrangement,[4] by introducing two major modifications. The first one is an angular spread of the light beam along the atomic beam, produced by means of cylindrical lenses (see Fig. 2). In so doing the absorption profile of the atoms is Doppler broadened and all

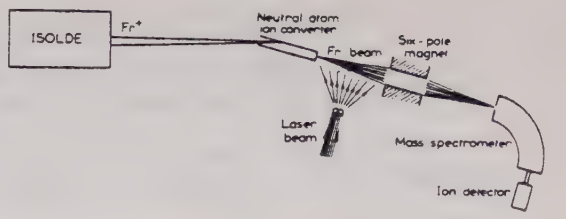


FIG. 2. General scheme of the experimental arrangement. Fr^+ ions are delivered by the ISOLDE facility with an energy corresponding to 60 keV. They are neutralized and thermalized by impinging on a hot tantalum tube coated with a thin layer of yttrium.

of them are excited, whatever their longitudinal velocity. The second modification, and the more important one, concerned the laser system itself. The laser configuration which we used is shown in Fig. 3. The laser cavity is of the symmetric type, which facilitates multimode oscillation. Since the cavity length is about 50 cm, longitudinal modes are spaced at about 300 MHz. The laser cavity is closed at one end by a totally reflective mirror and at the other by a highly efficient reflection grating. Close to the grating a glass plate, antireflection coated on one face and partially reflective on the other face, is placed perpendicularly to the laser axis in such a way that the system composed by the grating and the glass plate plays the role of a Fabry-Perot interferometer. The thickness of the equivalent interferometer corresponds to specific modes spaced by approximately $\Delta\sigma = 9$ GHz. The whole cavity is adjusted to oscillate in several modes, giving a laser frequency pattern [Fig. 3 (b)] formed of five or six packets of a few consecutive modes, each packet being spaced from the following one by $\Delta\sigma$. Continuous scanning operation is achieved by a sawtooth voltage applied

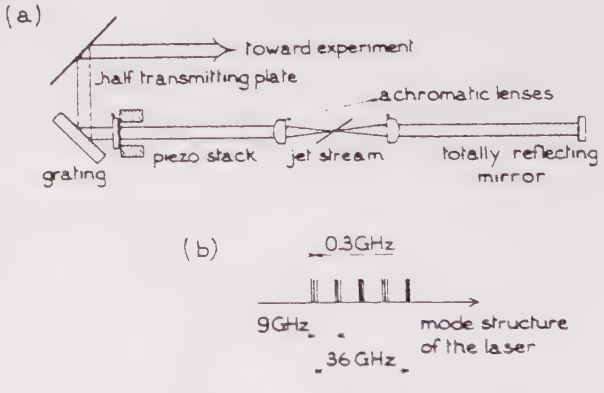


FIG. 3. (a) General scheme of the laser cavity arrangement; (b) mode structure of the laser. Displacing such a mode spectrum by 9 GHz results in scanning a range of 45 GHz.

to the glass-plate piezoceramic, which linearly shifts the laser mode pattern by about $\Delta\sigma$; it actually corresponds to a scanned frequency range of five to six times $\Delta\sigma$ and consequently reduces the recording time by the same factor. As the piezoceramic voltage decreases to zero, the grating is rotated (using a step-by-step motor) in order to jump a frequency interval of 45 GHz. Concerning the magnetic detection technique of the optical resonances which is used in these experiments, one has to pay attention to the fact that the efficiency of this method strongly depends on whether or not the atoms experience a "strong" magnetic field. The magnetic field is said to be strong as soon as it decouples I and J, or in other words when the Zeeman energy splitting in the ground level is larger than the hyperfine splitting. Since the maximum value of the field at the pole pieces of the six-pole magnet is 9 kG, one calculates that the hyperfine splitting of the ground state should not exceed 25 GHz. In fact, as will be seen later on, the ground-state hyperfine splitting greatly exceeds this value; however, using Zeeman optical pumping with such an intermediate field strength by means of properly polarized exciting light, it is still possible to detect all the hyperfine components of the line structure.

The flux of francium ions finally reaching the electron multiplier is about 10^3/s off resonance, i.e., a transmission rate of 10^{-5} for the whole system. Earlier experiments had shown that radioactive atoms implanted in the first dynode of an electron multiplier produced spurious pulses due to recoils from radioactive decay. The accumulation of francium and its descendants would then quickly contaminate the electron multiplier. For that reason, a special detector in which the first dynode was made of aluminized Mylar tape was built.[6] The secondary electrons are focused on a conventional Cu-Be electron multiplier while the tape can be moved at will, freeing the surface of any radioactivity. After a predetermined counting time the tape was moved by a step motor. In this way the background at the multiplier was not more than 10%.

During the laser scanning, the light beam is mechanically chopped at a frequency of 2 Hz. The two corresponding ion signals (with and without exciting light) are stored in two buffer counters in which they are accumulated during preset periods of time which are adjusted between 1 and 10 s, depending upon the production rates of Fr atoms (the mean number of counted ions must be around 2000). This procedure gives rise to an intensity-normalized spectrum, which permits elimination of the fluctuations in Fr atoms production due to the variation of the intensity of the proton beam which hits the uranium target. A typical recording is given in Fig. 4. It shows the resonance signal which was observed after starting from 700 nm and scanning the laser frequency toward increasing wavelengths. This allowed photographing of the laser light spectrum tuned at the resonance together with a neon reference spectrum through a grating spectrograph. The result is shown in Fig. 5. It permits one to distinguish the two components corresponding to the hyperfine splitting of the ground state and therefore to measure both the wavelength of the Fr D_2 line and the order of magnitude of the above-mentioned hyperfine splitting. It has been found $\lambda(D_2) = 717.97 \pm 0.01$ nm, and $\Delta(\text{hfs}) \simeq 50$ GHz. It is quite remarkable that this wavelength value is in good agreement with the empirical determination done by H. Yagoda (see Fig. 1) in 1932,[7] even before the discovery of the Fr element. Notice that it matches several other determinations and in particular a recent *ab initio* calculated value.[3]

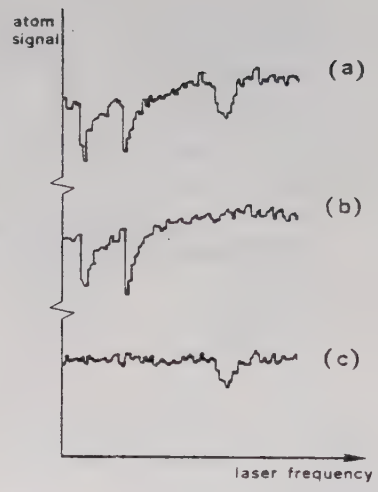


FIG. 4. Typical recordings of the ion signal versus laser frequency. Trace (a) gives the signal with laser light; trace (b) gives the signal without laser light; trace (c) gives the normalized signal obtained by subtracting signal (b) from signal (a). The remaining resonances are due to the Fr atoms.

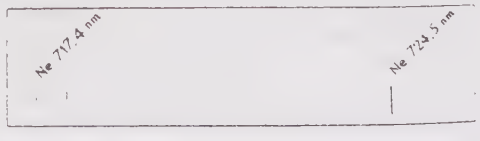


FIG. 5. Photograph of the laser light spectrum when it is tuned on the Fr D_2 resonance line. It is to be emphasized that in order to increase the precision of the wavelength measurement this picture has been taken using a dye laser oscillating on one single mode. This procedure has permitted us to distinguish between the two components due to the hyperfine splitting of the ground state.

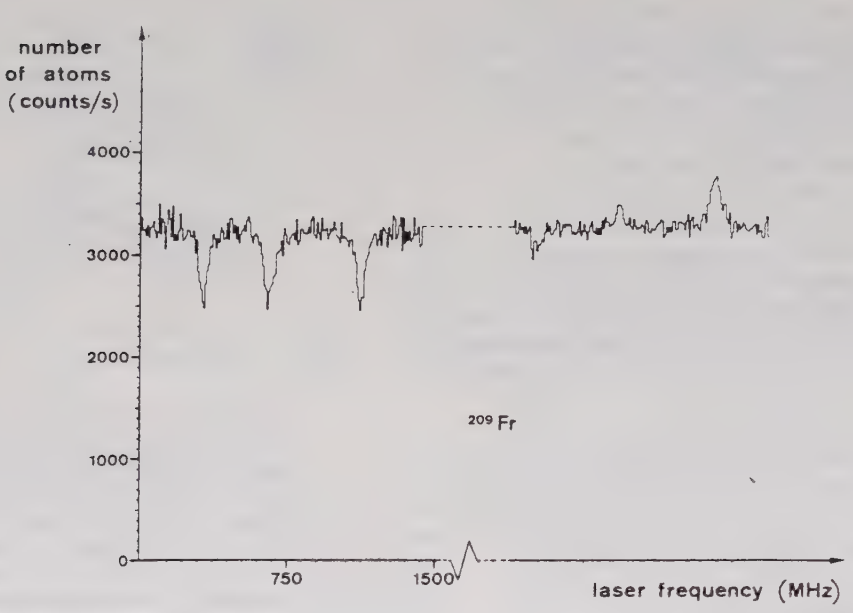


FIG. 6. Hyperfine-structure recording of ^{209}Fr D_2 resonance line. The two groups of three components are about 50 GHz apart. The presence of a negative component in the group on the right-hand side is explained in the text.

III. HIGH-RESOLUTION HYPERFINE-STRUCTURE STUDY

Having located the frequency of the Fr D_2 line, a high-resolution study was undertaken. It used the same experimental set-up as the one used for the other alkali atoms[4,5] and in particular the same laser arrangement of a CR-599 dye laser, pumped by a Kr-ion laser frequency driven by a sigmameter.

A typical recording of the hyperfine structure of the D_2 line of the Fr isotope of mass number 209 is given in Fig. 6. As previously mentioned in Sec. II, this recording is different from the ones obtained for the other alkalis; in particular, one can observe the transition $(F = I - \frac{1}{2}) - (F' = I - \frac{3}{2})$ in the D_2 line. This type of signal can be detected only in the low magnetic-field case using Zeeman optical pumping with σ-polarized light, because the magnetic sublevels of the $F = I - \frac{1}{2}$ hyperfine level have different magnetic moments. The effective magnetic moment of the initial and final state of the atom can differ by approximately one Bohr magneton, allowing us to detect this ordinarily unobservable transition. Due to the huge hyperfine splitting of the ground state, it was not possible to record the complete structure within one single scanning range of the laser (this range is actually limited to about 35 GHz continuous scanning). Therefore, in order to measure the whole structure, it was necessary to stop the frequency scanning and then to manually shift the laser frequency to a known amount corresponding to the free spectral range $\delta\sigma$ of the intracavity thick etalon, before pursuing the remaining frequency exploration. This $\delta\sigma$ value has been experimentally evaluated thanks to the sigmameter and found to be $\delta\sigma = 10.00$ GHz with a reproducibility of about 50 MHz. Of course, this procedure lowers somewhat the overall accuracy of the measurements in comparison with the other long series of alkali isotopes that we studied by the same methods. On the other hand it has not only permitted us to measure the hyperfine structure of the six Fr isotopes, but also to locate the center of gravity of each isotope with respect to the others. A schematic display of all the recorded structures is reported in Fig. 7. Table I gives the corresponding values of the isotope shifts (using neutron magic ^{213}Fr as a reference), as well as the hyperfine constants of the ground state ($^2S_{1/2}$) and of the excited state ($^2P_{3/2}$).

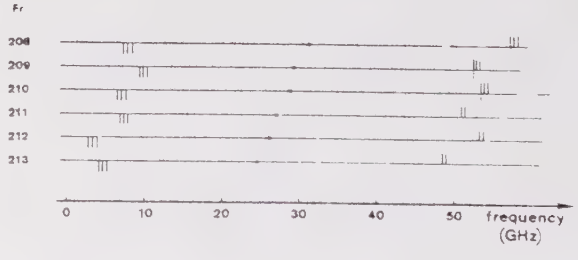


FIG. 7. Schematic display on a common frequency scale of the recorded structures of isotopes of mass number 208 to 213. The dot indicates the center of gravity of each structure.

TABLE I. Nuclear and atomic characteristics of Fr isotopes of mass number $A(=208-213)$. Nuclear spins I have been taken from Ref. 11. Isotope shifts (IS) are measured referring to isotope 213. Magnetic hyperfine constants A and electric quadrupole constants B are given for both ground level $7s\,^2S_{1/2}$ and excited level $7p\,^2P_{3/2}$. Quoted errors correspond to one standard deviation.

A	I	IS (MHz)	$A(^2S_{1/2})$ (MHz)	$A(^2P_{3/2})$ (MHz)	$B(^2P_{3/2})$ (MHz)
208	7	6645.2 (9.2)	6639.7 (7.0)	72.8 (0.5)	8.9 (7.5)
209	$\frac{9}{2}$	4771.4 (7.5)	8590.5 (10.5)	93.1 (0.6)	−61.0 (5.8)
210	6	4243.1 (8.0)	7182.4 (8.1)	77.9 (0.2)	47.6 (2.2)
211	$\frac{9}{2}$	2533.7 (8.0)	8698.2 (10.5)	94.7 (0.2)	−55.3 (3.4)
212	5	1628.3 (7.5)	9051.3 (9.5)	99.1 (0.9)	−35.3 (15.5)
213	$\frac{9}{2}$	0	8744.9 (10.5)	94.5 (1.6)	−20.7 (17.0)

It is to be noted that the value of the ratio $A(^2S_{1/2})/A(^2P_{3/2})$ is constant to better than 0.5%, which is an indication of the consistency of the measurements. No hyperfine anomaly has been found for the studied isotopes. From the above experimental values it is not possible to extract any nuclear moment. An ABMR experiment is in progress to measure g_I (Ref. 9). In fact, there exists a series of g-factor measurements of the $(h_{9/2})^n$ proton states of $N=126$ nuclides. In the case of ^{213}Fr, for instance, one finds $g_I=0.888(3)$ for the state $(h_{9/2})^5_{I=21/2^-}$.[10] Assuming that g_I is independent of I and n, it is possible to calculate a plausible value of the magnetic moment $\mu(^{213}\mathrm{Fr})=3.996(14)\,\mu_N$. As a check, one should note that $^{209}_{83}\mathrm{Bi}_{126}$ and $^{213}_{87}\mathrm{Fr}_{126}$ have the same neutron number and their unpaired proton is in the same $h_{9/2}$ level, since both have a nuclear spin $\frac{9}{2}$. Therefore their magnetic moments are expected to be very close. The measured value of $\mu(^{209}\mathrm{Bi})$ is 4.1 μ_N,[12] which is in excellent agreement with the previously calculated value of $\mu(^{213}\mathrm{Fr})$. Using this value it is easy to deduce from the measured value $A(^2P_{3/2})$ of ^{213}Fr and the usual Fermi-Segre formula a new evaluation of the $7p$ fine-structure splitting, $\Delta T=1573\ \mathrm{cm}^{-1}$. This leads to a semi empirical determination of the wavelength location of the D_1 line which, under these assumptions, would lie at $\lambda(D_1)=809.4 \pm 10$ nm. This value is to be compared to the ones given in Fig. 1. The effective quantum number of the ground state, $n^*(^2S_{1/2})$, can also be calculated using the measured hyperfine coupling constant $A(^2S_{1/2})$ of ^{213}Fr and the Fermi-Segre formula. We obtained $n^*=1.802$ placing the ionization limit at 33 800 cm^{-1} (4.19 eV).

IV. CONCLUSION

This first series of experiments on Fr isotopes has permitted us to measure the wavelength of the D_2 line and to study the hyperfine structure and isotope shift of six isotopes. Obviously, new experiments are needed in order to find out the location of the D_1 line and even to locate other resonance lines, such as $7s-8p$ lines, which are expected to lie in the blue range of the visible spectrum. Concerning high-resolution investigations the study of heavier isotopes of Fr would be of great physical interest because it would correspond to the first systematic isotope measurements across the 126 neutron magic number.

*Present address: University of Bonn, Germany.
†Service de Physique Atomique, Centre d'Etudes Nucléaires, Saclay, France, and the "Isolde" collaboration.

[1]S. Liberman, J. Pinard, H. T. Duong, P. Juncar, J.-L. Vialle, P. Jacquinot, G. Huber, F. Touchard, S. Büttgenbach, A. Pesnelle, C. Thibault, and R. Klapisch, C. R. Acad. Sci. B 286, 253 (1978).
[2]M. Perey, C. R. Acad. Sci. 208, 97 (1939).
[3]L. C. Carraz, I. R. Haldorsen, H. L. Ravn, M. Skarestad, and L. Westgaard, Nucl. Instrum. Meth. 143, 217 (1978).
[4]G. Huber, F. Touchard, S. Büttgenbach, C. Thibault, R. Klapisch, H. T. Duong, S. Liberman, J. Pinard, J.-L. Vialle, P. Juncar, and P. Jacquinot, Phys. Rev. C 18, 2342 (1978); Phys. Rev. Lett. 41, 459 (1978).
[5]S. Liberman, J. Pinard, H. T. Duong, P. Juncar, J.-L. Vialle, P. Pillet, P. Jacquinot, G. Huber, F. Touchard, S. Büttgenbach, C. Thibault, R. Klapisch, and A. Pesnelle, in *Laser Spectroscopy IV*, edited by H. Walther and K. W. Rothe (Springer, Berlin, 1979).
[6]F. Touchard, G. Huber, R. Fergeau, C. Thibault, and R. Klapisch, Nucl. Instrum. Meth. 155, 449 (1978).
[7]H. Yagoda, Phys. Rev. 40, 1017 (1932).

[8]H. Lundberg and A. Rosen, Z. Phys. A 286, 329 (1978).
[9]C. Ekström (private communication).
[10]G. H. Fuller, J. Phys. Chem. Ref. Data 5, 947 (1976).
[11]C. Ekström, S. Ingelman, G. Wannberg, and M. Skarestaad, Phys. Scr. 18, 51 (1978).
[12]O. Haüsser, J. R. Beene, A. B. McDonald, T. K. Alexander, E. D. Earle, C. Khanna, I. S. Towner, G. A. Beer, and A. Olin, Phys. Lett. 63B, 279 (1976); O. Haüsser, J. R. Beene, T. Faestermann, T. K. Alexander, D. Horn, A. B. McDonald, and A. J. Ferguson, Hyp. Int. IV, 219 (1978).